

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
C 0 7 C 211/54		C 0 7 C 211/54	3 K 0 0 7
255/58		255/58	4 H 0 0 6
C 0 7 F 9/40		C 0 7 F 9/40	E 4 H 0 5 0
9/54		9/54	
C 0 9 K 11/06	6 2 5	C 0 9 K 11/06	6 2 5
審査請求 未請求 請求項の数42 O L (全 81 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願平11-285255
 (22) 出願日 平成11年10月6日 (1999.10.6)

(71) 出願人 000002185
 ソニー株式会社
 東京都品川区北品川6丁目7番35号
 (72) 発明者 市村 眞理
 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内
 (72) 発明者 石橋 義
 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内
 (74) 代理人 100076059
 弁理士 逢坂 宏

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ビス (アミノステリル) ナフタレン化合物及びその合成中間体、並びにこれらの製造方法

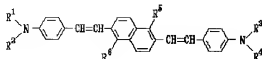
(57) 【要約】

【課題】 強い発光を呈し、黄色～赤色の発光材料となりうるビス (アミノステリル) ナフタレン化合物と、その一般的かつ高効率な製造方法を提供すること。

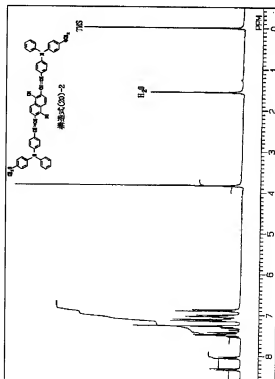
【解決手段】 下記一般式 [I] 等で表されるビス (アミノステリル) ナフタレン化合物。例えば 4- (N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドとジホスホン酸エステル又はジホスホンウムとの縮合による製造方法。

【化164】

一般式 [I] :



(但し、前記一般式 [I] において、R² 及び R³ は無置換のアリール基であり、R¹ 及び R⁴ はメトキシ基などの特定の置換基を有するアリール基、R⁵ 及び R⁶ はシアノ基などの基である。)



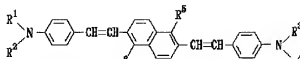
【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス（アミノチリル）ナフタレン

化合物。

【化1】

一般式〔I〕：



〔但し、前記一般式〔I〕において、 R^2 及び R^3 は無置換のアリール基であり、 R^1 及び R^4 は下記一般式

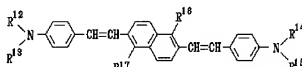
（1）で表されるアリール基であり

【化2】

一般式（1）：



一般式〔II〕：



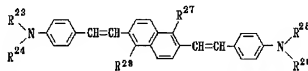
〔但し、前記一般式〔II〕において、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 及び R^{15} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（2）で表されるアリール基であり

【化4】

一般式（2）：



一般式〔III〕：



〔但し、前記一般式〔III〕において、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 及び R^{26} は少なくとも1つが下記一般式（3）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化6】

一般式（3）：



〔但し、前記一般式〔I〕において、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} 及び R^{11} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）、 R^5 及び R^6 は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。〕

【化3】

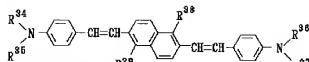
〔但し、前記一般式（2）において、 R^{18} 、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} 及び R^{22} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）、 R^{16} 及び R^{17} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。〕

【化5】

〔但し、前記一般式（3）において、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）、 R^{27} 及び R^{28} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。〕

【化7】

一般式 (IV) :



〔但し、前記一般式 (IV) において、R³⁵及びR³⁶は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

【化8】

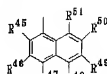
一般式 (4) :



〔但し、前記一般式 (4) において、R⁴⁰、R⁴¹、R⁴²、R⁴³及びR⁴⁴は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R³⁴及びR³⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表されるアリール基であり

【化9】

一般式 (5) :

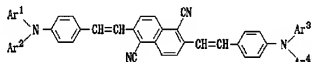


〔但し、前記一般式 (5) において、R⁴⁵、R⁴⁶、R⁴⁷、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰及びR⁵¹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。]

【請求項2】 下記一般式 (6) で表されるビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

【化10】

一般式 (6) :



〔但し、前記一般式 (6) において、Ar¹、Ar²、Ar³ 及び Ar⁴ はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化11】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



一般式 (11) :



一般式 (12) :



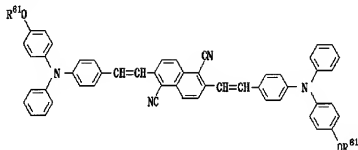
一般式 (12') :



一般式 (12'') :



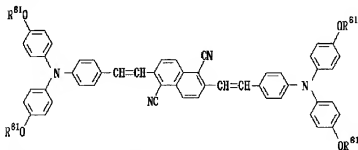
一般式 (13) :



(但し、前記一般式 (13) において、R⁶¹は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 3】

一般式 (13') :



(但し、前記一般式 (13') において、R⁶¹は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 4】

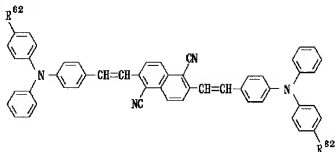
(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、R⁵²、R⁵³及び R⁵⁴は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、n は 0 ～ 6 の整数であり、m は 0 ～ 3 の整数であり、l は 0 ～ 4 の整数である。)

【請求項 3】 前記 R⁵²、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰の炭素数が 1 ～ 6 である、請求項 2 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

【請求項 4】 下記一般式 (13)、(13')、(14)、(15)、(16)、(17)、(18)、(18') 又は (19) で表される、請求項 1 又は 2 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

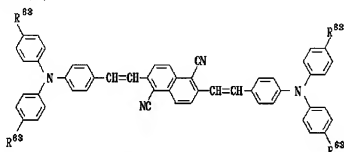
【化 1 2】

一般式 (14) :



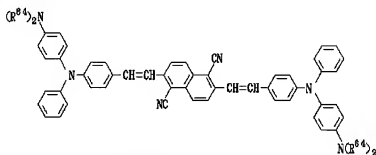
(但し、前記一般式 (14) において、 R^{62} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 15】

一般式 (15) :



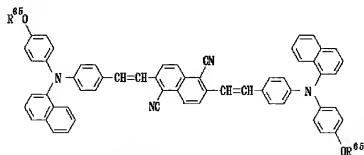
(但し、前記一般式 (15) において、 R^{63} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 16】

一般式 (16) :



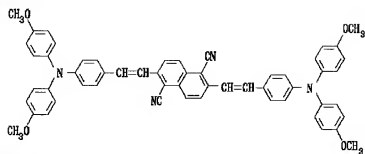
(但し、前記一般式 (16) において、 R^{64} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 17】

一般式 (17) :

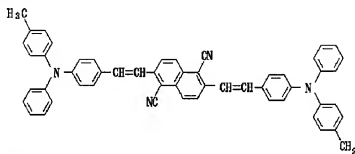


(但し、前記一般式 (17) において、 R^{65} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 18】

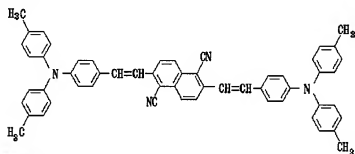
構造式 (20)-3 :



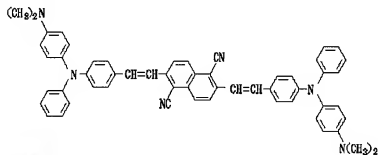
構造式 (20)-4 :



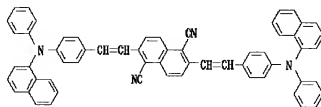
構造式 (20)-5 :



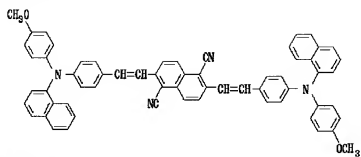
構造式 (20)-6 :



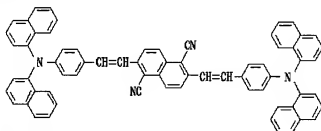
構造式 (20)-7 :



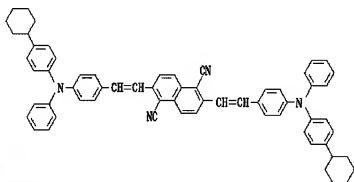
構造式 (20)-8 :



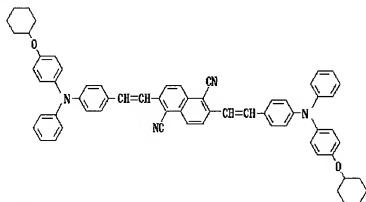
構造式 (20)-9 :



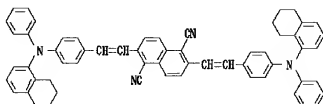
構造式 (20)-10 :



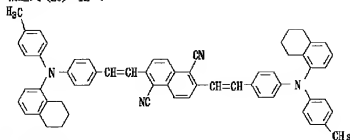
構造式 (20)-11 :



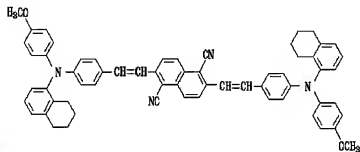
構造式 (20)-12 :



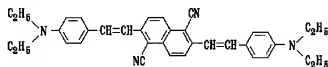
構造式 (20)-12' :



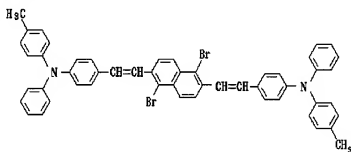
構造式 (20)-13 :



構造式 (20)-14 :

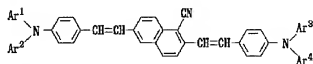


構造式 (20)-15 :



【請求項6】 下記一般式(21)で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物。 【化22】

一般式 (21) :



〔但し、前記一般式(21)において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12')又は(12'')で表されるアリール基から選ばれた基である。〕

【化23】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



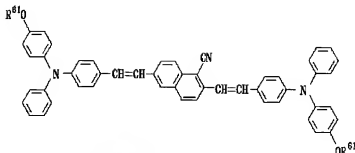
一般式 (11) :



一般式 (12) :

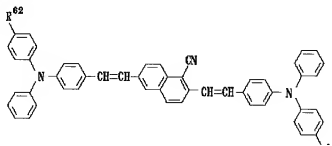


一般式 (22) :



(但し、前記一般式 (22) において、R⁶¹は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

一般式 (23) :



一般式 (12') :



一般式 (12'') :



(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、R⁵²、R⁵³及び R⁵⁴は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、n は 0 ~ 6 の整数であり、m は 0 ~ 3 の整数であり、l は 0 ~ 4 の整数である。)

【請求項 7】 前記 R⁵²、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰の炭素数が 1 ~ 6 である、請求項 6 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

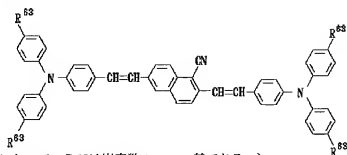
【請求項 8】 下記一般式 (22)、(23)、(24)、(25)、(26)、(27)、(27') 又は (28) で表される、請求項 1 又は 6 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

【化 24】

【化 25】

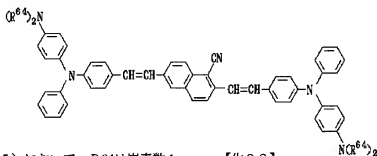
(但し、前記一般式(23)において、R⁶²は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化26】

一般式(24):



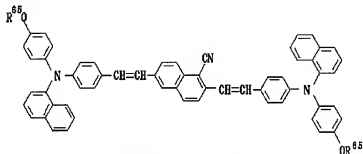
(但し、前記一般式(24)において、R⁶³は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。) 【化27】

一般式(25):



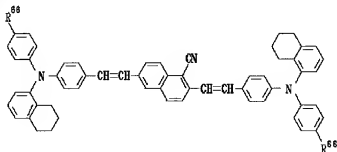
(但し、前記一般式(25)において、R⁶⁴は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化28】

一般式(26):



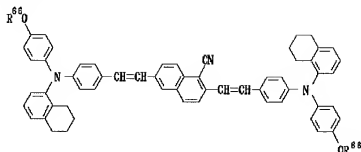
(但し、前記一般式(26)において、R⁶⁴は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化29】

一般式(27):



(但し、前記一般式(27)において、R⁶⁶は水素原子又は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化30】

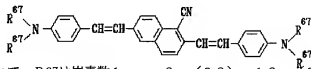
一般式 (27) :



(但し、前記一般式 (27') において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 3 1】

一般式 (28) :



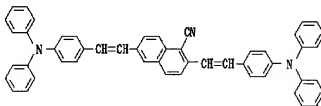
(但し、前記一般式 (28) において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

9、(29) - 10、(29) - 11、(29) - 12、(29) - 12'、(29) - 13、(29) - 14又は(29) - 15で表される、請求項 1又は6に記載したビス (アミノステリル) ナフタレン化合物。

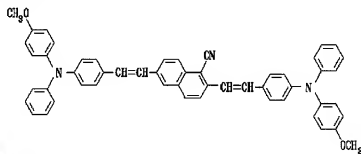
【請求項 9】 下記構造式 (29) - 1、(29) - 2、(29) - 3、(29) - 4、(29) - 5、(29) - 6、(29) - 7、(29) - 8、(29) -

【化 3 2】

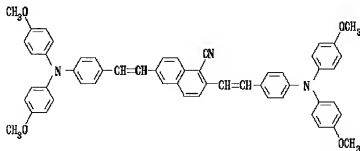
構造式 (29) - 1 :



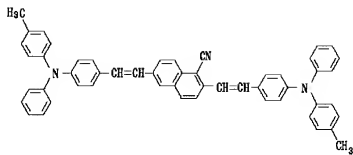
構造式 (29) - 2 :



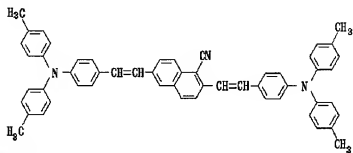
構造式 (29) - 8 :



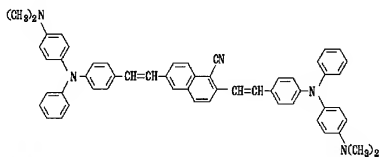
構造式 (28)-4 :



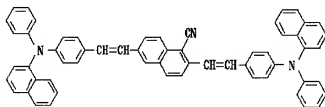
構造式 (28)-5 :



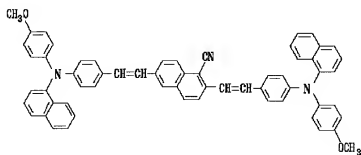
構造式 (28)-6 :



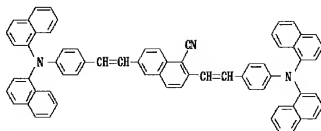
構造式 (28)-7 :



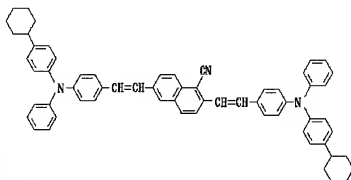
構造式 (28)-8 :



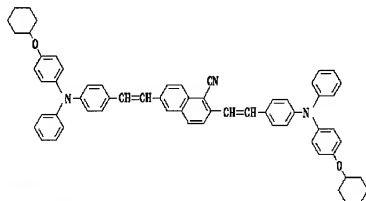
構造式 (29) - 9 :



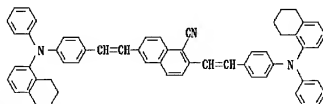
構造式 (28) - 10 :



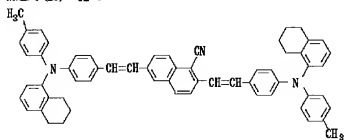
構造式 (29) - 11 :



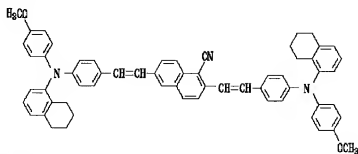
構造式 (28) - 12:



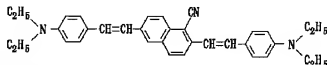
構造式 (29) - 12' :



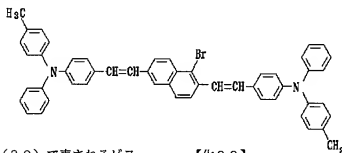
構造式 (29) - 13 :



構造式 (29) - 14 :



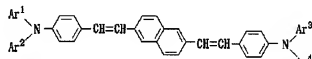
構造式 (29) - 15 :



【請求項 10】 下記一般式 (30) で表されるビス
(アミノステリル) ナフタレン化合物。

【化 3 3】

一般式 (30) :



(但し、前記一般式 (30) において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 3 4】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



一般式 (11) :



一般式 (12) :



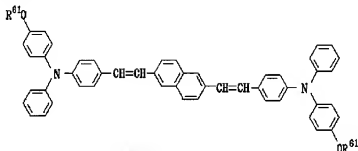
一般式 (12') :



一般式 (12'') :



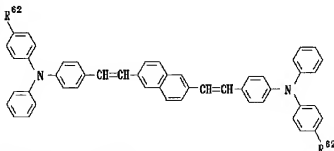
一般式 (31) :



(但し、前記一般式 (31) において、 R^{61} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 3 6】

一般式 (32) :



(但し、前記一般式 (32) において、 R^{62} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 3 7】

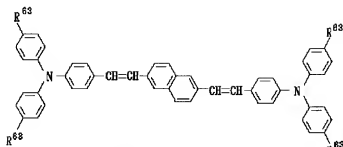
(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、 R^{52} 、 R^{53} 及び R^{54} は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0 ～ 6 の整数であり、 m は 0 ～ 3 の整数であり、 l は 0 ～ 4 の整数である。)

【請求項 11】 前記 R^{52} 、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} の炭素数が 1 ～ 6 である、請求項 10 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

【請求項 12】 下記一般式 (31)、(32)、(33)、(34)、(35)、(36)、(36') 又は (37) で表される、請求項 1 又は 10 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

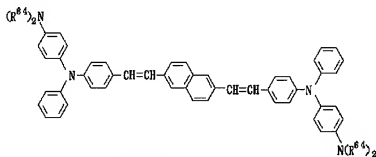
【化 3 5】

一般式 (33) :



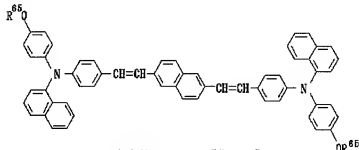
(但し、前記一般式 (33) において、 R^{63} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。) 【化 3 8】

一般式 (34) :



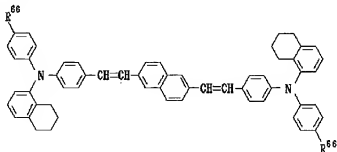
(但し、前記一般式 (34) において、 R^{64} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 3 9】

一般式 (35) :



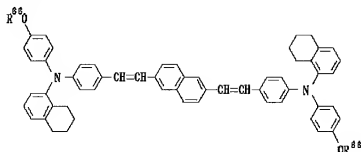
(但し、前記一般式 (35) において、 R^{65} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 4 0】

一般式 (36) :



(但し、前記一般式 (36) において、 R^{66} は水素原子又は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 4 1】

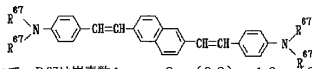
一般式 (36') :



(但し、前記一般式 (36') において、 R^{66} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 4 2】

一般式 (37) :



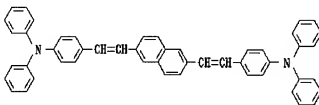
(但し、前記一般式 (37) において、 R^{67} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

9、(38) - 10、(38) - 11、(38) - 12、(38) - 12'、(38) - 13又は(38) - 14で表される、請求項 1又は10に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物。

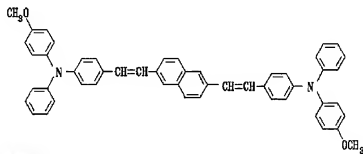
【請求項 13】 下記構造式 (38) - 1、(38) - 2、(38) - 3、(38) - 4、(38) - 5、(38) - 6、(38) - 7、(38) - 8、(38) -

【化 4 3】

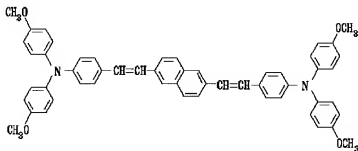
構造式 (38) - 1 :



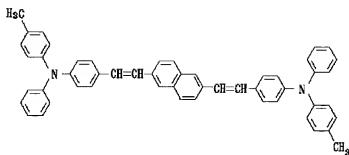
構造式 (38) - 2 :



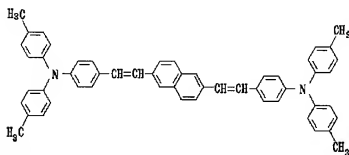
構造式 (38) - 3 :



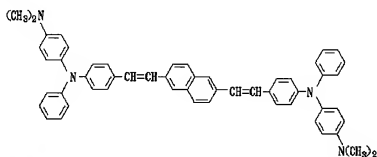
構造式 (88) - 4 :



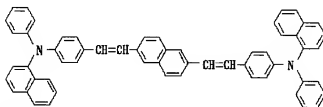
構造式 (38) - 5 :



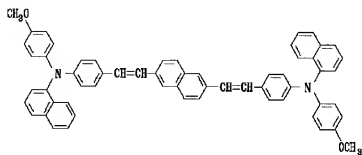
構造式 (88) - 6 :



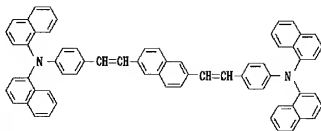
構造式 (88) - 7 :



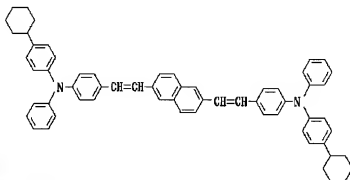
構造式 (38) - 8 :



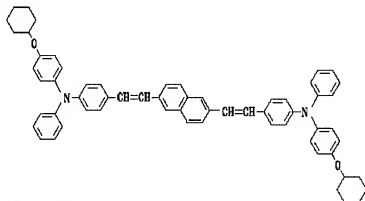
構造式 (38)-9 :



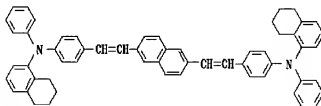
構造式 (38)-10 :



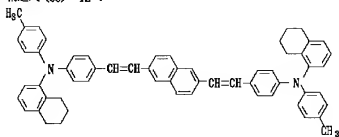
構造式 (38)-11 :



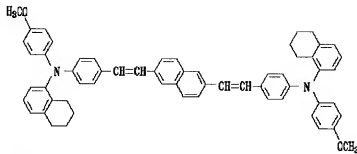
構造式 (38)-12:



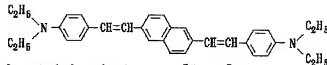
構造式 (38)-12' :



構造式 (38) - 13 :



構造式 (38) - 14 :



【請求項 14】 下記一般式 (V) 又は (VI) で表される 4- (N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドの少なくとも 1 種と; 下記一般式 (VII) で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式 (VIII) で表されるジホスホニウムと; を縮合させることによって、下記一般式 (I) 、 (II) 、 (III) 又は (IV) で表されるビス (アミノステリル) ナフタレン化合物を得る、ビス (アミノステリル) ナフタレン化合物の製造方法。

【化 4 4】

一般式 (V) :

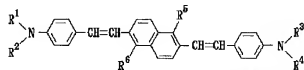


一般式 (VI) :



(但し、前記一般式 (V) 及び (VI) において、R⁶⁸ 及び R⁶⁹ はそれぞれ、下記 R¹、R²、R¹²、R¹³、R²³、R²⁴、R³⁴ 又は R³⁵ に相当するアリール基であり、R⁷⁰ 及び R⁷¹ はそれぞれ、下記 R³、R⁴、R¹⁴、R¹⁵、R²⁵、R²⁶、R³⁶ 又は R³⁷ に相当するアリール基である。)

一般式 (I) :



(但し、前記一般式 (I) において、R² 及び R³ は無置換のアリール基であり、R¹ 及び R⁴ は下記一般式 (1) で表されるアリール基であり

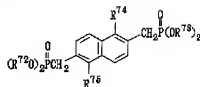
【化 4 7】

一般式 (1) :

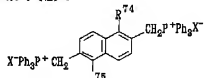


【化 4 5】

一般式 (VII) :



一般式 (VIII) :

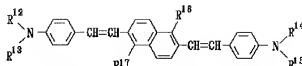


(但し、前記一般式 (VII) 及び (VIII) において、R⁷² 及び R⁷³ はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、R⁷⁴ 及び R⁷⁵ はそれぞれ、下記 R⁵、R⁶、R¹⁶、R¹⁷、R²⁷、R²⁸、R³⁸ 又は R³⁹ に相当する基であり、X はハロゲン原子である。)

【化 4 6】

(但し、前記一般式 (1) において、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰ 及び R¹¹ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R⁵ 及び R⁶ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。)

一般式 (I) :



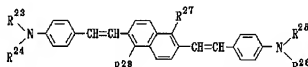
(但し、前記一般式 (I) において、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 及び R^{15} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (2) で表されるアリール基であり

【化 4 9】

一般式 (2) :



一般式 (III) :



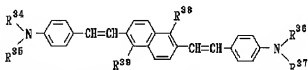
(但し、前記一般式 (III) において、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 及び R^{26} は、少なくとも 1 つが下記一般式 (3) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化 5 1】

一般式 (3) :



一般式 (IV) :



(但し、前記一般式 (IV) において、 R^{35} 及び R^{36} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

【化 5 3】

一般式 (4) :



(但し、前記一般式 (4) において、 R^{40} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 及び R^{44} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基又は炭化水素アミノ基である。)、 R^{34} 及び R^{37} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表

(但し、前記一般式 (2) において、 R^{18} 、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} 及び R^{22} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが炭化数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、 R^{16} 及び R^{17} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。]

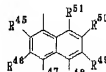
【化 5 0】

(但し、前記一般式 (3) において、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、 R^{27} 及び R^{28} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。]

【化 5 2】

【化 5 4】

一般式 (5) :



(但し、前記一般式 (5) において、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 及び R^{51} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、 R^{38} 及び R^{39} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。]

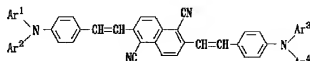
【請求項 15】 前記縮合をウイッティヒーホーナー

よって行い、前記ジホスホン酸エステル及び／又は前記ジホスホニウムを溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記 4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドとを縮合させる、請求項 1 4 に記載した、ビス(アミノス

チリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 1 6】 下記一般式 (6) で表されるビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物を得るに際し
【化 5 5】

一般式 (8) :



(但し、前記一般式 (6) において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 5 6】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



一般式 (11) :



一般式 (12) :



一般式 (12') :



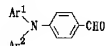
一般式 (12'') :



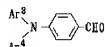
(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、 R^{52} 、 R^{53} 及び R^{54} は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0~6 の整数であり、 m は 0~3 の整数であり、 l は 0~4 の整数である。))、下記一般式 (39) 又は (40) で表される 4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも 1 種と；下記一般式 (41) で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式 (42) で表されるジホスホニウムと；を縮合させる、請求項 1 4 に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【化 5 7】

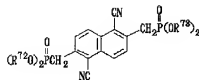
一般式 (38) :



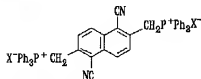
一般式 (40) :



一般式 (41) :



一般式 (42) :



(但し、前記一般式 (39)、(40)、(41) 及び

(42) において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと同一である。)

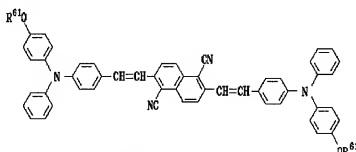
【請求項 17】 前記 R⁷²及び R⁷³を炭素数 1~4 の飽和炭化水素基とする、請求項 16 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 18】 前記 R⁵²、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰の炭素数を 1~6 とする、請求項 16 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 19】 下記一般式 (13)、(14)、(15)、(16)、(17)、(18)、(18') 又は (19) で表されるビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物を得る、請求項 14 又は 16 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物の製造方法。

【化 58】

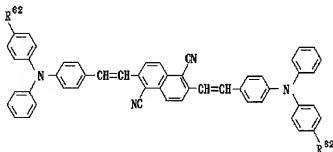
一般式 (13) :



(但し、前記一般式 (13) において、R⁶¹は炭素数 1~6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 59】

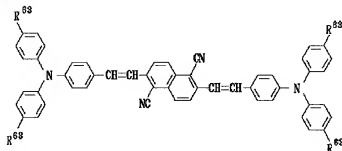
一般式 (14) :



(但し、前記一般式 (14) において、R⁶²は炭素数 1~6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 60】

一般式 (15) :

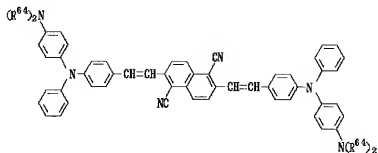


(但し、前記一般式 (15) において、R⁶³は炭素数 1~6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ

基である。)

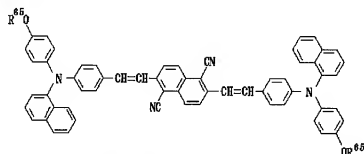
【化 61】

一般式 (16) :



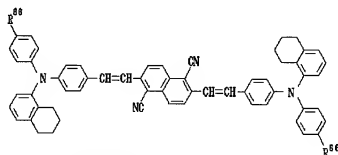
(但し、前記一般式 (16) において、R⁶⁴は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 6 2】

一般式 (17) :



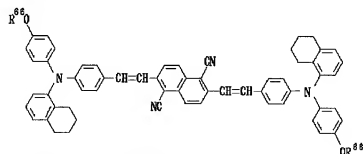
(但し、前記一般式 (17) において、R⁶⁵は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 6 3】

一般式 (18) :



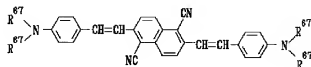
(但し、前記一般式 (18) において、R⁶⁶は水素原子又は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 6 4】

一般式 (18') :



(但し、前記一般式 (18') において、R⁶⁶は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 6 5】

一般式 (18) :

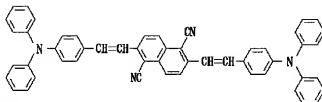


【請求項 20】 下記構造式 (20) - 1、(20) - 2、(20) - 3、(20) - 4、(20) - 5、(20) - 6、(20) - 7、(20) - 8、(20) - 9、(20) - 10、(20) - 11、(20) - 12、(20) - 12'、(20) - 13、(20) - 1

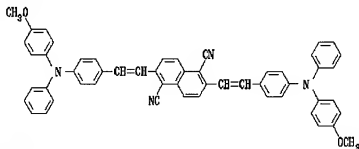
4 又は (20) - 15 で表されるビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物を得る、請求項 14 又は 16 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物の製造方法。

【化 66】

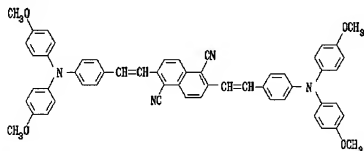
構造式 (20) - 1 :



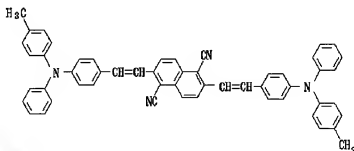
構造式 (20) - 2 :



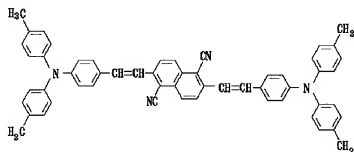
構造式 (20) - 3 :



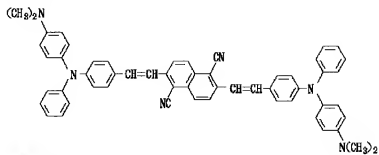
構造式 (20) - 4 :



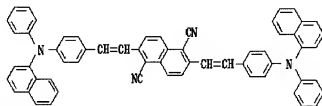
構造式 (20) - 5 :



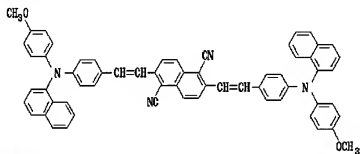
構造式 (20)-6 :



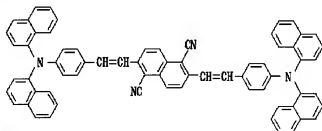
構造式 (20)-7 :



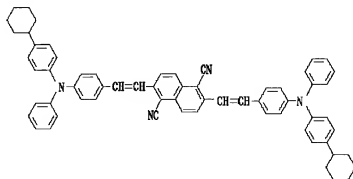
構造式 (20)-8 :



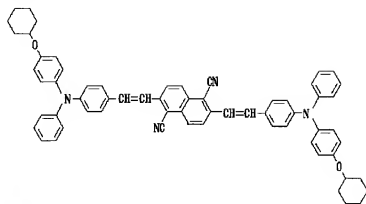
構造式 (20)-9 :



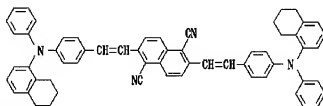
構造式 (20)-10 :



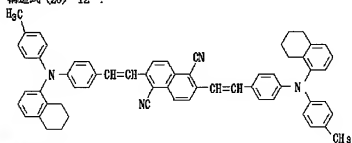
構造式 (20)-11 :



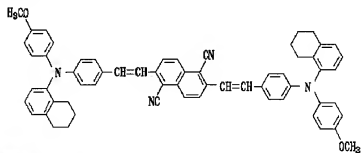
構造式 (20)-12 :



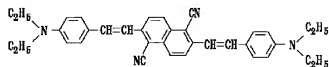
構造式 (20)-12' :



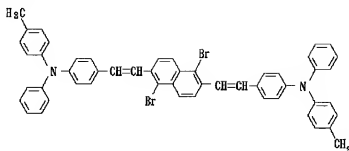
構造式 (20)-13 :



構造式 (20)-14



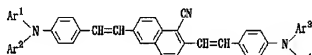
構造式 (20)-15:



【請求項 21】 下記一般式 (21) で表されるビス
(アミノステリル) ナフタレン化合物を得るに際し

【化 6 7】

一般式 (21) :



(但し、前記一般式 (21) において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 6 8】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



一般式 (11) :



一般式 (12) :



一般式 (12') :



一般式 (12'') :

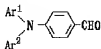


(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、 R^{52} 、 R^{53} 及び R^{54} は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0~6 の整数であり、 m は 0~3 の整数であり、 l は 0~4 の整数である。) 、下記一般式 (39) 又は (40) で表される 4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドの少なくとも 1 種と; 下記一般式 (43) で表さ

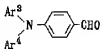
されるジホスホニウムと；を縮合させる、請求項 1 4 に記載したビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物の製造方法。

【化 6 9】

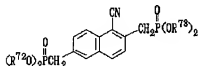
一般式 (39) :



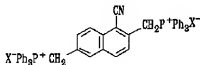
一般式 (40) :



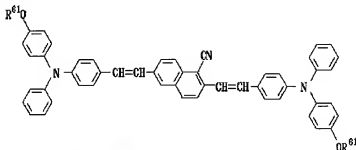
一般式 (43) :



一般式 (44) :



一般式 (22) :



(但し、前記一般式 (2 2) において、R⁶¹は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

(但し、前記一般式 (3 9) 、(4 0) 、(4 3) 及び (4 4) において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと同一である。)

【請求項 2 2】 前記 R⁷²及び R⁷³を炭素数 1 ～ 4 の飽和炭化水素基とする、請求項 2 1 に記載したビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物の製造方法。

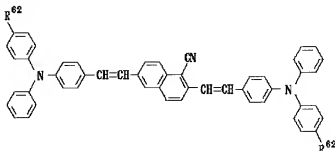
【請求項 2 3】 前記 R⁵²、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰の炭素数を 1 ～ 6 とする、請求項 2 1 に記載したビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 2 4】 下記一般式 (2 2) 、(2 3) 、(2 4) 、(2 5) 、(2 6) 、(2 7) 、(2 7') 又は (2 8) で表されるビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物、請求項 1 4 又は 2 1 に記載したビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物の製造方法。

【化 7 0】

【化 7 1】

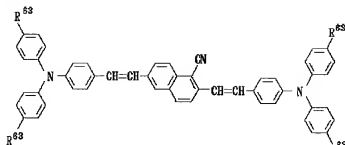
一般式 (23) :



(但し、前記一般式 (2 3) において、R⁶²は炭素数 1

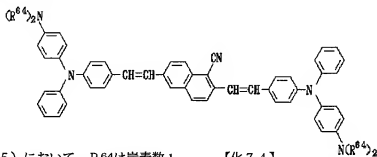
【化 7 2】

一般式 (24) :



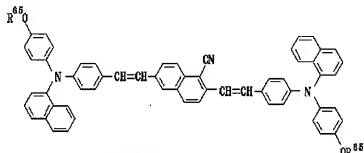
(但し、前記一般式 (24) において、 R^{63} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。) 【化 7 3】

一般式 (25) :



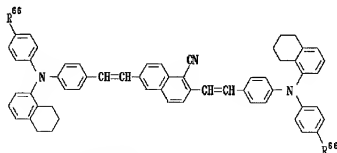
(但し、前記一般式 (25) において、 R^{64} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 7 4】

一般式 (26) :



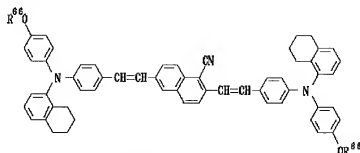
(但し、前記一般式 (26) において、 R^{65} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 7 5】

一般式 (27) :



(但し、前記一般式 (27) において、 R^{66} は水素原子又は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 7 6】

一般式 (27) :

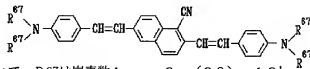


(但し、前記一般式 (27') において、R⁶⁶は水素原子又は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基であ

る。)

【化 7 7】

一般式 (28) :



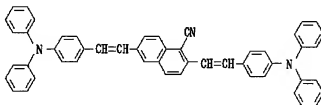
(但し、前記一般式 (28) において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項 25】 下記構造式 (29) - 1、(29) - 2、(29) - 3、(29) - 4、(29) - 5、(29) - 6、(29) - 7、(29) - 8、(29) - 9、(29) - 10、(29) - 11、(29) - 1

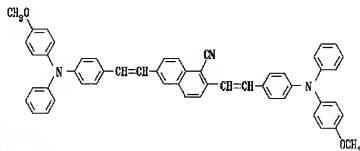
2、(29) - 12'、(29) - 13、(29) - 14又は(29) - 15で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得る、請求項 14又は21に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【化 7 8】

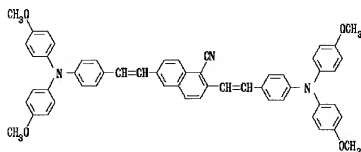
構造式 (29) - 1 :



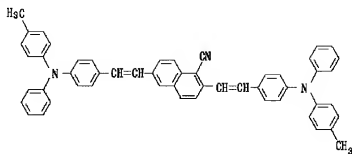
構造式 (29) - 2 :



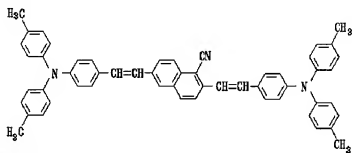
構造式 (29) - 3 :



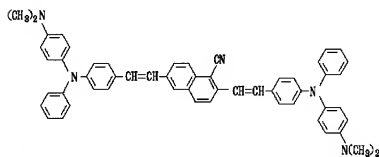
構造式 (29)-4 :



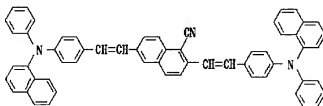
構造式 (29)-5 :



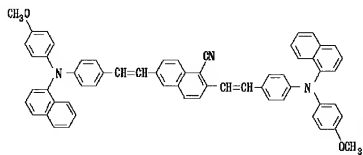
構造式 (29)-6 :



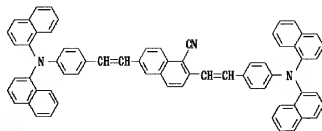
構造式 (29)-7 :



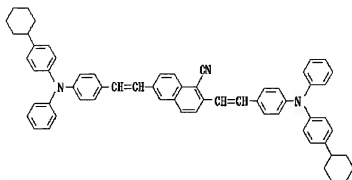
構造式 (29)-8 :



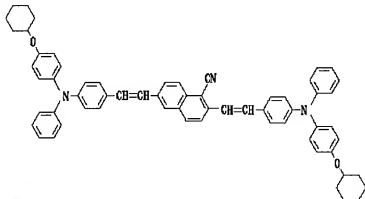
構造式 (29) - 9 :



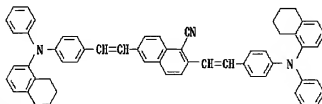
構造式 (29) - 10 :



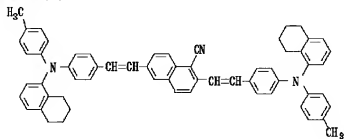
構造式 (29) - 11 :



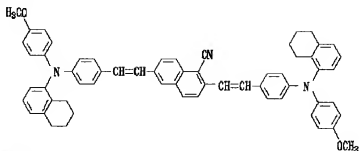
構造式 (29) - 12 :



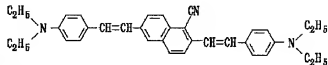
構造式 (29) - 12' :



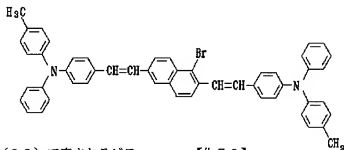
構造式 (29) - 13 :



構造式 (29) - 14 :



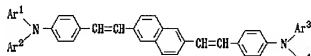
構造式 (29) - 15 :



【請求項 26】 下記一般式 (30) で表されるビス
(アミノステリル) ナフタレン化合物を得るに際し

【化 79】

一般式 (30) :



(但し、前記一般式 (30) において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 80】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



一般式 (11) :



一般式 (12) :



一般式 (12') :



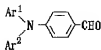
一般式 (12'') :



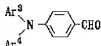
(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、R⁵²、R⁵³及びR⁵⁴は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及びR⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、nは0～6の整数であり、mは0～3の整数であり、lは0～4の整数である。)」、下記一般式 (39) 又は (40) で表される4-(N、N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式 (45) で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式 (46) で表されるジホスホンウムと；を縮合させる、請求項14に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【化81】

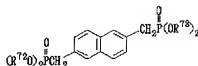
一般式 (39) :



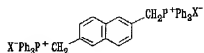
一般式 (40) :



一般式 (45) :



一般式 (46) :



(但し、前記一般式 (39)、(40)、(45) 及び (46) において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと同一である。)

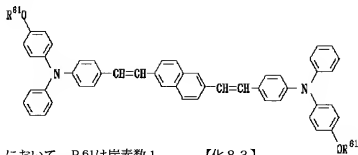
【請求項27】 前記R⁷²及びR⁷³を炭素数1～4の飽和炭化水素基とする、請求項26に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項28】 前記R⁵²、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及びR⁶⁰の炭素数を1～6とする、請求項26に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項29】 下記一般式 (31)、(32)、(33)、(34)、(35)、(36)、(36') 又は (37) で表されるビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物を得る、請求項14又は26に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

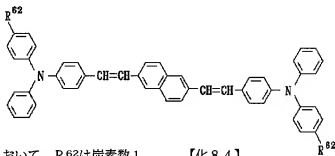
【化82】

一般式 (31) :



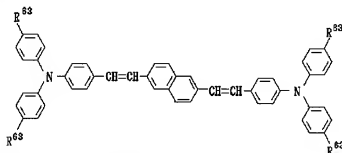
(但し、前記一般式 (3 1) において、R⁶¹は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

一般式 (32) :



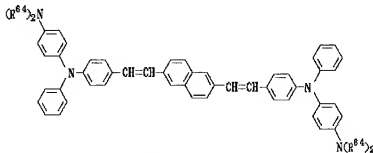
(但し、前記一般式 (3 2) において、R⁶²は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

一般式 (33) :



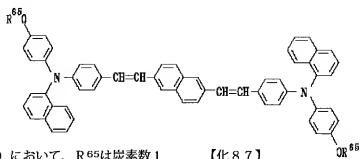
(但し、前記一般式 (3 3) において、R⁶³は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ
基である。)

一般式 (34) :



(但し、前記一般式 (3 4) において、R⁶⁴は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

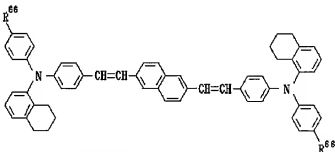
一般式 (35) :



(但し、前記一般式 (35) において、R⁶⁵は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 8 7】

一般式 (36) :

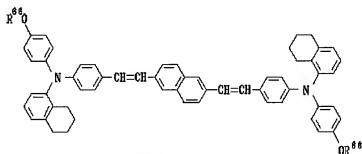


(但し、前記一般式 (36) において、R⁶⁶は水素原子又は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基であ

る。)

【化 8 8】

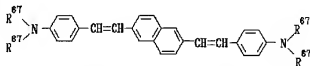
一般式 (36') :



(但し、前記一般式 (36') において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 8 9】

一般式 (37) :



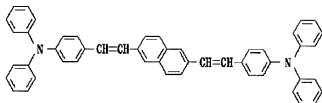
(但し、前記一般式 (37) において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項 30】 下記構造式 (38) - 1、(38) - 2、(38) - 3、(38) - 4、(38) - 5、(38) - 6、(38) - 7、(38) - 8、(38) - 9、(38) - 10、(38) - 11、(38) - 1

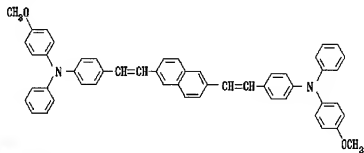
2、(38) - 12'、(38) - 13又は(38) - 14で表されるビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物を得る、請求項 14又は26に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【化 90】

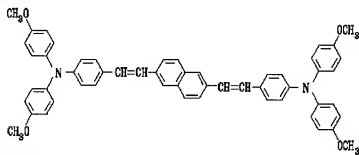
構造式 (38) - 1 :



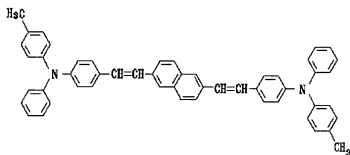
構造式 (38) - 2 :



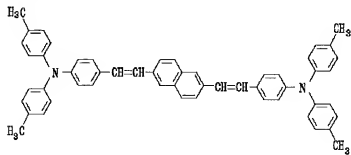
構造式 (38) - 3 :



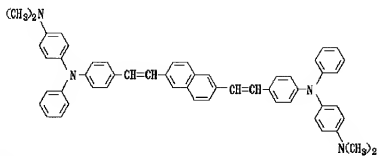
構造式 (38) - 4 :



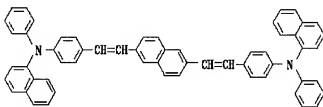
構造式 (38) - 5 :



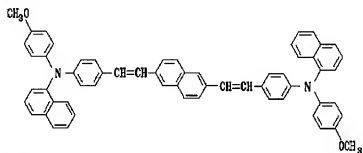
構造式 (88)-6 :



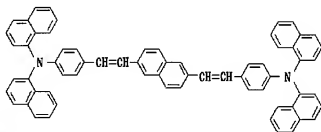
構造式 (88)-7 :



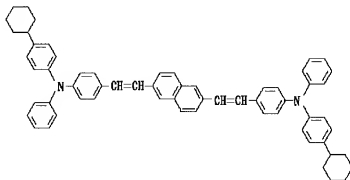
構造式 (38)-8 :



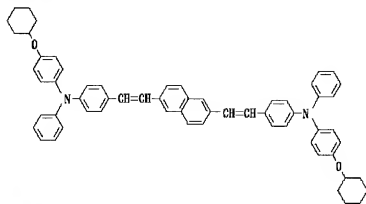
構造式 (38)-9 :



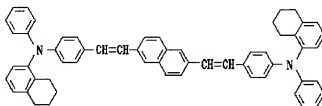
構造式 (38)-10 :



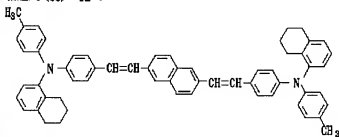
構造式 (38)-11 :



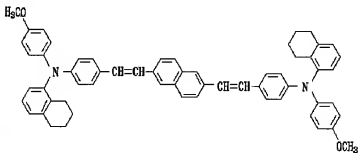
構造式 (38)-12:



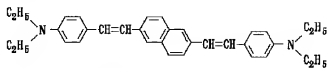
構造式 (38)-12' :



構造式 (38)-13 :



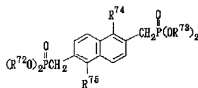
構造式 (38) : 14



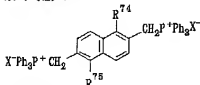
【請求項 31】 下記一般式 (VII) 又は (VIII) で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウム。

【化 91】

一般式 (VII) :



一般式 (VIII) :



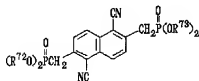
(但し、前記一般式 (VII) 及び (VIII) において、 R^{72} 及び R^{73} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、 R^{74} 及び R^{75} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 X はハロゲン原子である。)

【請求項 32】 前記 R^{72} 及び R^{73} が炭素数 1 ~ 4 の飽和炭化水素基である、請求項 31 に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム。

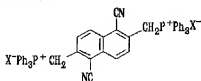
【請求項 33】 下記一般式 (41) 又は (42) で表される、請求項 31 に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム。

【化 9 2】

一般式 (41) :



一般式 (42) :

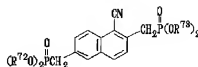


(但し、前記一般式 (41) 及び (42) において、 R^{72} 、 R^{73} 及び X は前記したものと同じである。)

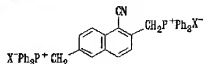
【請求項 34】 下記一般式 (43) 又は (44) で表される、請求項 31 に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム。

【化 9 3】

一般式 (43) :



一般式 (44) :

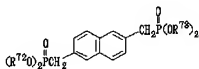


(但し、前記一般式 (43) 及び (44) において、 R^{72} 、 R^{73} 及び X は前記したものと同じである。)

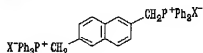
【請求項 35】 下記一般式 (45) 又は (46) で表される、請求項 31 に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム。

【化 9 4】

一般式 (45) :



一般式 (46) :

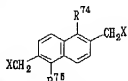


(但し、前記一般式 (45) 及び (46) において、 R^{72} 、 R^{73} 及び X は前記したものと同じである。)

【請求項 36】 下記一般式 (IX) で表されるハロゲン化アリール化合物と、下記一般式 (X) で表される亜リン酸トリアルキル又はトリフェニルホスフィン (PPh₃) とを反応させることによって、下記一般式 (VII) 又は (VIII) で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウムを得る、ジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

【化 9 5】

一般式 (IX) :



(但し、前記一般式 (IX) において、 R^{74} 及び R^{75} はそ

少なくとも1つが酸素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、Xはハロゲン原子である。)

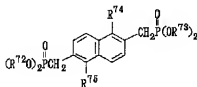
一般式〔X〕:



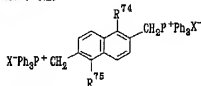
(但し、前記一般式〔X〕において、R⁷⁶及びR⁷⁷はそれぞれ、同一の又は異なる炭化水素基である。)

【化96】

一般式〔VII〕:



一般式〔VIII〕:



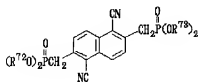
(但し、前記一般式〔VII〕及び〔VIII〕において、R⁷²及びR⁷³はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、R⁷⁴、R⁷⁵及びXは前記したものと同じである。)

【請求項37】 前記R⁷²及びR⁷³を炭素数1~4の飽和炭化水素基とする、請求項36に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

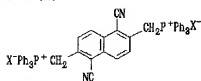
【請求項38】 下記一般式(41)又は(42)で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウムを得る、請求項36に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

【化97】

一般式(41):



一般式(42):

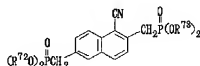


(但し、前記一般式(41)及び(42)において、R

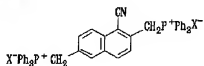
【請求項39】 下記一般式(43)又は(44)で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウムを得る、請求項36に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

【化98】

一般式(43):



一般式(44):

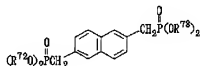


(但し、前記一般式(43)及び(44)において、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと同じである。)

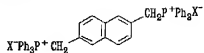
【請求項40】 下記一般式(45)又は(46)で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウムを得る、請求項36に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

【化99】

一般式(45):



一般式(46):

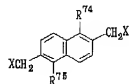


(但し、前記一般式(45)及び(46)において、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと同じである。)

【請求項41】 下記一般式〔IX〕で表されるハロゲン化アリール化合物。

【化100】

一般式〔IX〕:

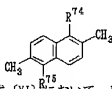


れ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが酸素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、Xはハロゲン原子である。）

【請求項42】 下記一般式〔XI〕で表されるナフタレン化合物と、下記一般式〔XII〕で表されるN-ハロゲン化スクシニミドとを反応させることによって、下記一般式〔IX〕で表されるハロゲン化アリール化合物を得る、ハロゲン化アリール化合物の製造方法。

【化1011】

一般式〔XI〕：



（但し、前記一般式〔XI〕において、R⁷⁴及びR⁷⁵はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが酸素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である。）

【化1012】

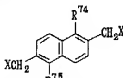
一般式〔XII〕：



（但し、前記一般式〔XII〕において、Xはハロゲン原子である。）

【化1013】

一般式〔IX〕：



（但し、前記一般式〔IX〕において、R⁷⁴及びR⁷⁵は前記したものと同じであり、Xはハロゲン原子である。）

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、所望の発光色を呈する有機発光材料として好適なビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物及びその合成中間体、並びにこれらの製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】自発光であって、応答速度が高速であり、視野角依存性の無いフラットパネルディスプレイの1候補として、有機電界発光素子（EL素子）等が近時注目されており、その構成材料として、有機発光材料への関心が高まっている。有機発光材料の第一の利点は、

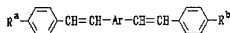
ロールできるところにあり、これによって赤、青、緑の3色発光をすべてそれぞれの発光材料で作成したフルカラー有機発光素子の実現が可能である。

【0003】下記一般式〔A〕で示されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物は、導入される置換基に依存して、可視領域に青〜赤の強い発光を呈することから、有機電界発光素子材料に限らず、さまざまな用途に利用可能である。さらに、これら材料は昇昇性であり、真空蒸着等のプロセスによって、均一なアモルファス膜を形成しうる利点がある。今日では分子軌道計算等により、材料の光学的な性質がある程度までは予測可能であるが、実際には要求される材料を高効率に製造する技術が産業上もっとも重要であることは、いうまでもない。

【0004】

【化104】

一般式〔A〕：



（但し、前記一般式〔A〕において、Arは置換基を有してもよいアリール基であり、R^a及びR^bはそれぞれ、酸素原子、飽和又は不飽和の炭化水素基、置換基を有してもよいアリール基、シアノ基、ハロゲン原子、ニトロ基、トリフルオロメチル基、アミノ基、又はアルコキシ基を示し、これらは同一であっても異なってもよい。）

【0005】

【発明が解決しようとする課題】これまで、有機発光材料として前記一般式〔A〕に属する多くの化合物が製造されてきたが、これらの材料の発光は多くが青色〜緑色であり、黄色〜赤色の発光を呈するものはわずかに報告されているのみであり〔電子情報通信学会、技術研究報告書、有機エレクトロニクス、17,7(1992)、Inorganic and Organic Electroluminescence 96 Berlin, 101(1996)等〕、またその高効率な製造法も確立されていなかった。

【0006】本発明の目的は、上記のような現状に鑑み、強い発光を呈する特に黄色〜赤色の有機発光材料として好適な化合物及びその合成中間体と、これらを高効率に製造する方法を提供することにある。

【0007】

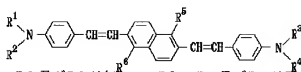
【課題を解決するための手段】本発明者は、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物が強い発光を呈し、黄色〜赤色の発光材料となりうることを見出し、かつその一般的かつ高効率な製造方法を確立し、本発明に到達したものである。

【0008】即ち、本発明はまず、下記一般式〔I〕、

テリル) ナフタレン化合物(以下、本発明の化合物と称する。)に係るものである。

【化105】

一般式〔I〕:



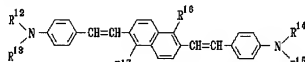
(但し、前記一般式〔I〕において、 R^2 及び R^3 は無置換のアリール基であり、 R^1 及び R^4 は下記一般式(1)で表されるアリール基であり
【化106】

一般式(1):



(但し、前記一般式(1)において、 R^7 、 R^8 、

一般式〔II〕:

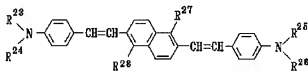


(但し、前記一般式〔II〕において、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 及び R^{15} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(2)で表されるアリール基であり
【化108】

一般式(2):



一般式〔III〕:



(但し、前記一般式〔III〕において、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 及び R^{26} は少なくとも1つが下記一般式(3)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり
【化110】

一般式(3):

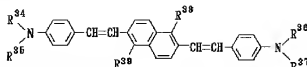


R^9 、 R^{10} 及び R^{11} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、 R^5 及び R^6 は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子(F 、 Cl 、 Br 、 I 等:以下、同様)である。]
【化107】

(但し、前記一般式(2)において、 R^{18} 、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} 及び R^{22} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、 R^{16} 及び R^{17} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である。]
【化109】

(但し、前記一般式(3)において、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、 R^{27} 及び R^{28} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である。]
【化111】

一般式〔Ⅳ〕：



(但し、前記一般式〔Ⅳ〕において、R³⁵及びR³⁶は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(4)で表されるアリール基であり

【化1112】

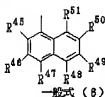
一般式(4)：



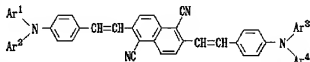
(但し、前記一般式(4)において、R⁴⁰、R⁴¹、R⁴²、R⁴³及びR⁴⁴は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R³⁴及びR³⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(5)で表されるアリール基であり

【化1113】

一般式(5)：



一般式(8)：



(但し、前記一般式(6)において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12')又は(12'')で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化1115】

(但し、前記一般式(5)において、R⁴⁵、R⁴⁶、R⁴⁷、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰及びR⁵¹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である。]

【0009】本発明の化合物は、黄色～赤色の発光を示す有機発光材料として有効に利用することができ、また、高いガラス転移点及び融点を有する化合物であり、電気的、熱的或いは化学的な安定性に優れている上、非晶質でガラス状態を容易に形成し得るので、蒸着等を行うことができる。

【0010】本発明の化合物は、下記一般式で表されるものが好ましい。

【化1114】

一般式(7)：



一般式(8)：



一般式(9)：



一般式(10)：



一般式 (11) :



一般式 (12) :



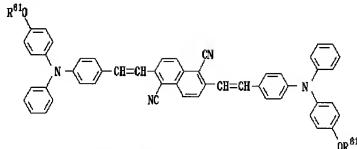
一般式 (12') :



一般式 (12'') :



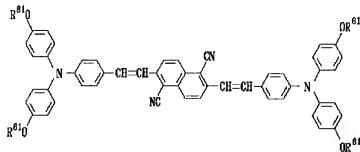
一般式 (13) :



(但し、前記一般式 (13) において、R⁶¹は炭素数1
～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化117】

一般式 (13') :



(但し、前記一般式 (13') において、R⁶¹は炭素数
1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

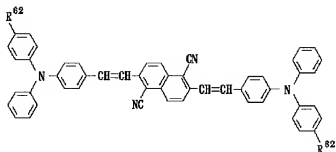
【化118】

(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12')及び(12'')において、R⁵²、R⁵³及びR⁵⁴は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基(特に炭素数が6以下がよい(炭素数0のときは無置換))以下、同様)であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及びR⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基(特に炭素数が6以下がよい(炭素数0のときは無置換))以下、同様)であり、nは0～6の整数であり、mは0～3の整数であり、lは0～4の整数である。))

【0011】本発明の化合物は、より具体的には、下記一般式(13)、(13') (14)、(15)、(16)、(17)、(18)、(18')又は(19)で表されるものがよい。

【化116】

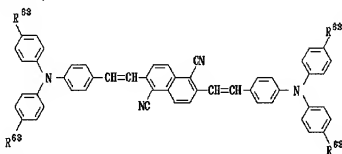
一般式 (14) :



(但し、前記一般式 (14) において、R⁶²は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 1 9】

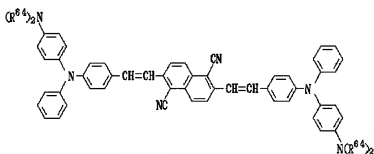
一般式 (15) :



(但し、前記一般式 (15) において、R⁶³は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 2 0】

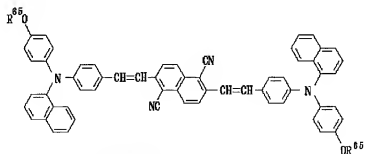
一般式 (16) :



(但し、前記一般式 (16) において、R⁶⁴は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 2 1】

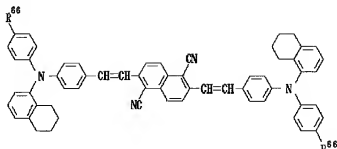
一般式 (17) :



(但し、前記一般式 (17) において、R⁶⁵は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

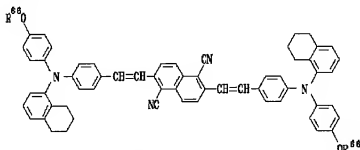
【化 1 2 2】

一般式 (18) :



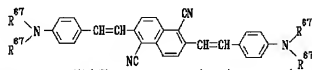
(但し、前記一般式 (18) において、R⁶⁶は炭素数 1 【化123】
 ~6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

一般式 (18') :



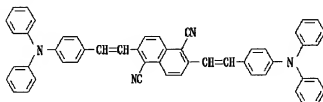
(但し、前記一般式 (18') において、R⁶⁶は炭素数 【化124】
 1~6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

一般式 (19) :

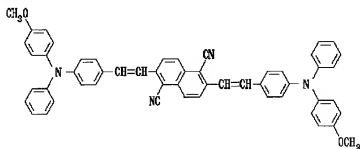


(但し、前記一般式 (19) において、R⁶⁷は炭素数 8、(20)-9、(20)-10、(20)-11、
 ~6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) (20)-12、(20)-12'、(20)-13、
 【0012】本発明の化合物は、下記構造式 (20)- (20)-14又は(20)-15で表されるものが具
 1、(20)-2、(20)-3、(20)-4、(2 体的に例示される。
 0)-5、(20)-6、(20)-7、(20)- 【化125】

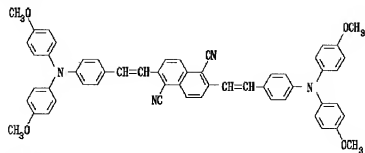
構造式 (20)-1 :



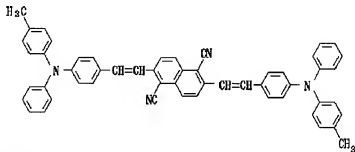
構造式 (20)-2 :



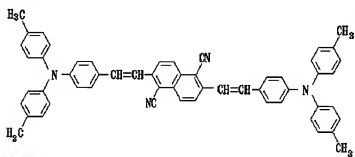
構造式 (20)-3 :



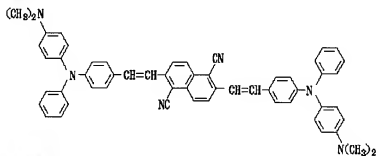
構造式 (20)-4 :



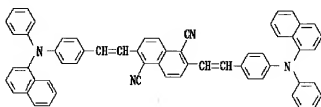
構造式 (20)-5 :



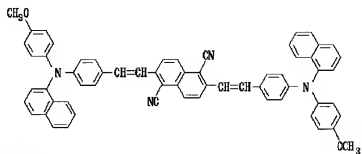
構造式 (20)-6 :



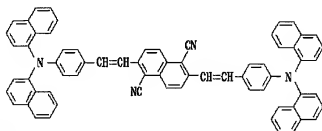
構造式 (20)-7 :



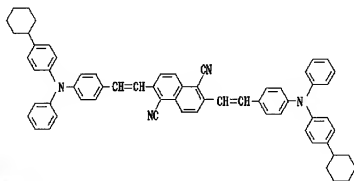
構造式 (20) - 8 :



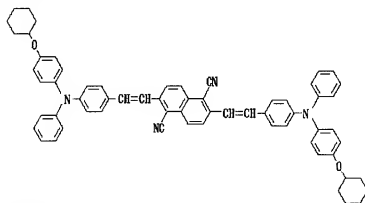
構造式 (20) - 9 :



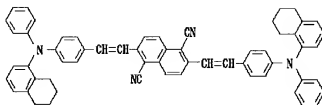
構造式 (20) - 10 :



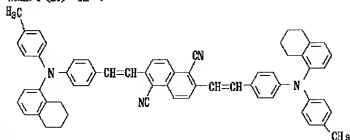
構造式 (20) - 11 :



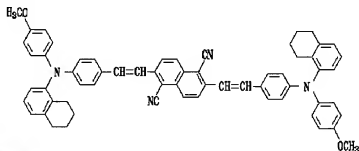
構造式 (20) - 12 :



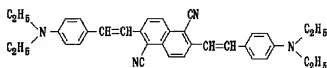
構造式 (20)-12' :



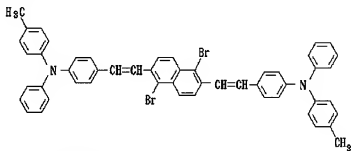
構造式 (20)-13 :



構造式 (20) : 14



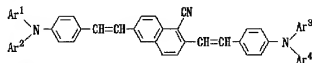
構造式 (20)-15 :



【0013】本発明の化合物は、下記一般式で表されるものも好ましい。

【化126】

一般式 (21) :



(但し、前記一般式(21)において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12')又は(12'')で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化127】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



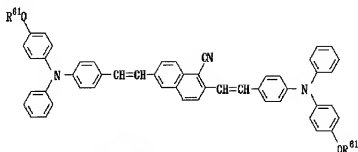
一般式 (11) :



一般式 (12) :

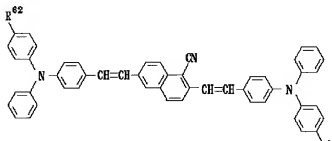


一般式 (22) :



(但し、前記一般式 (22) において、 R^{61} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

一般式 (23) :



一般式 (12') :



一般式 (12'') :



(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、 R^{52} 、 R^{53} 及び R^{54} は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0 ~ 6 の整数であり、 m は 0 ~ 3 の整数であり、 l は 0 ~ 4 の整数である。)

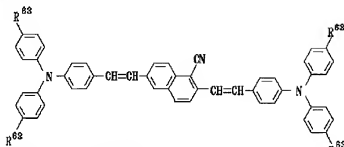
【0014】この本発明の化合物は、より具体的には、下記一般式 (22)、(23)、(24)、(25)、(26)、(27)、(27') 又は (28) で表されるものがよい。

【化 1 2 8】

【化 1 2 9】

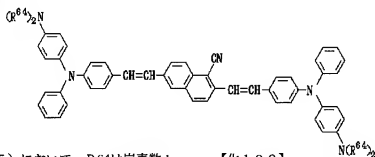
(但し、前記一般式(23)において、R⁶²は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化130】

一般式(24)：



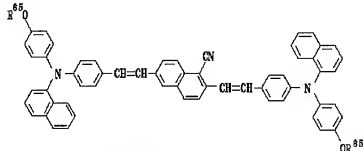
(但し、前記一般式(24)において、R⁶³は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。) 【化131】

一般式(25)：



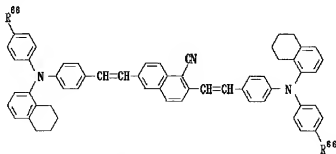
(但し、前記一般式(25)において、R⁶⁴は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化132】

一般式(26)：



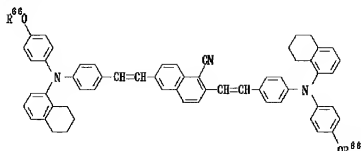
(但し、前記一般式(26)において、R⁶⁵は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化133】

一般式(27)：



(但し、前記一般式(27)において、R⁶⁶は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化134】

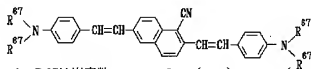
一般式 (27') :



(但し、前記一般式 (27') において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化135】

一般式 (28) :



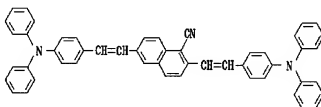
(但し、前記一般式 (28) において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

8、(29)-9、(29)-10、(29)-11、(29)-12、(29)-12'、(29)-13、(29)-14又は(29)-15で表されるものが具体的に例示される。

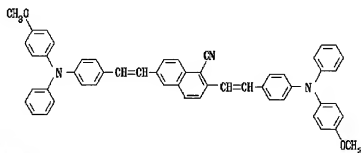
【0015】本発明の化合物は、下記構造式 (29)-1、(29)-2、(29)-3、(29)-4、(29)-5、(29)-6、(29)-7、(29)-

【化136】

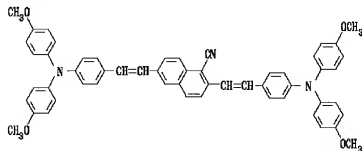
構造式 (29)-1 :



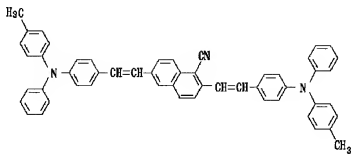
構造式 (29)-2 :



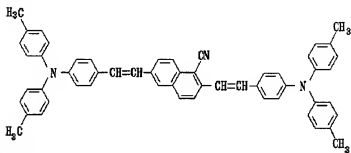
構造式 (29)-3 :



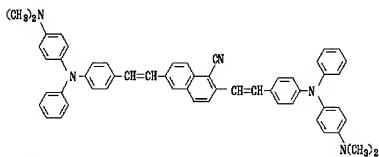
構造式 (29)-4 :



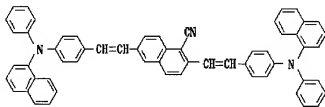
構造式 (29)-5 :



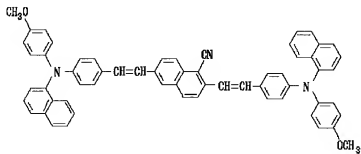
構造式 (29)-6 :



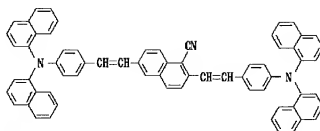
構造式 (29)-7 :



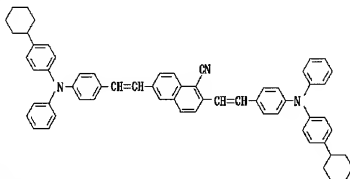
構造式 (29)-8 :



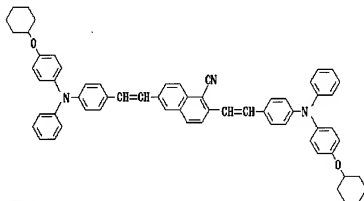
構造式 (29) - 9 :



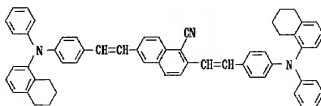
構造式 (29) - 10 :



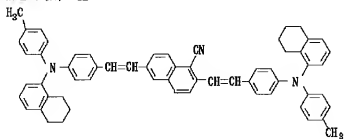
構造式 (29) - 11 :



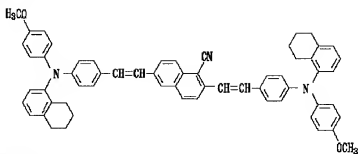
構造式 (29) - 12:



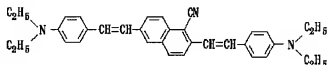
構造式 (29) - 12' :



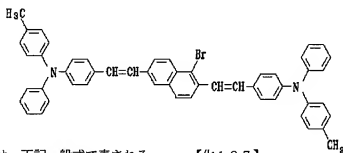
構造式 (29) - 13 :



構造式 (29) : 14



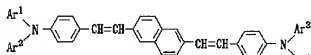
構造式 (29) - 15:



【0016】本発明の化合物は、下記一般式で表されるものも好ましい。

【化137】

一般式 (30) :



(但し、前記一般式 (30) において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化138】

一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



一般式 (10) :



一般式 (11) :



一般式 (12) :



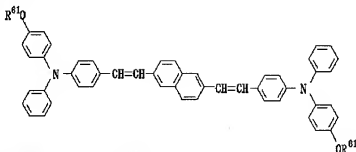
一般式 (12') :



一般式 (12'') :



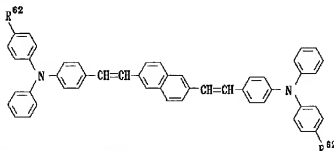
一般式 (31) :



(但し、前記一般式 (31) において、R⁶¹は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 4 0】

一般式 (32) :



(但し、前記一般式 (32) において、R⁶²は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

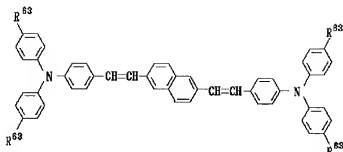
【化 1 4 1】

(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、R⁵²、R⁵³及び R⁵⁴は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、n は 0 ~ 6 の整数であり、m は 0 ~ 3 の整数であり、l は 0 ~ 4 の整数である。)

【0017】本発明の化合物は、より具体的には、下記一般式 (31)、(32)、(33)、(34)、(35)、(36)、(36') 又は (37) で表されるものがよい。

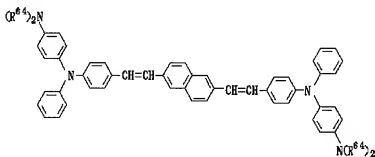
【化 1 3 9】

一般式 (33) :



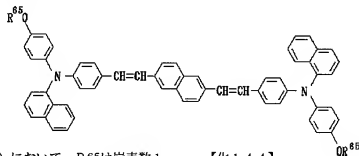
(但し、前記一般式 (33) において、R⁶³は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ
基である。) 【化 1 4 2】

一般式 (34) :



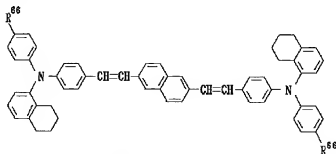
(但し、前記一般式 (34) において、R⁶⁴は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 1 4 3】

一般式 (35) :



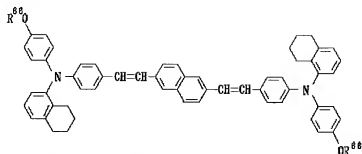
(但し、前記一般式 (35) において、R⁶⁵は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 1 4 4】

一般式 (36) :



(但し、前記一般式 (36) において、R⁶⁶は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化 1 4 5】

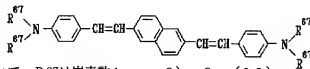
一般式 (36') :



(但し、前記一般式 (36') において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 4 6】

一般式 (37) :



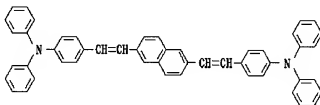
(但し、前記一般式 (37) において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

8) - 8、(38) - 9、(38) - 10、(38) - 11、(38) - 12、(38) - 12'、(38) - 13又は(38) - 14で表されるものが具体的に例示される。

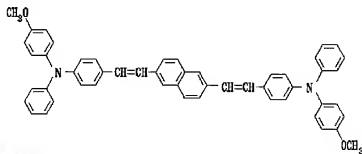
【0018】この本発明の化合物は、下記構造式 (38) - 1、(38) - 2、(38) - 3、(38) - 4、(38) - 5、(38) - 6、(38) - 7、(3

【化 1 4 7】

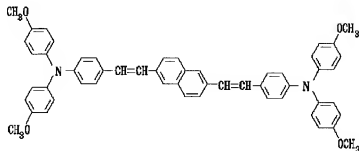
構造式 (38) - 1 :



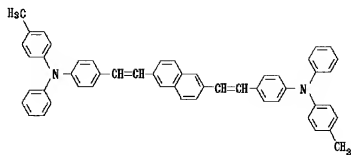
構造式 (38) - 2 :



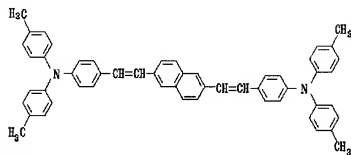
構造式 (38) - 3 :



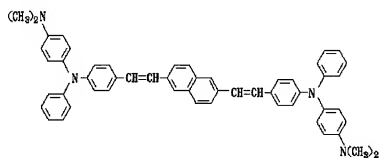
構造式 (38)-4 :



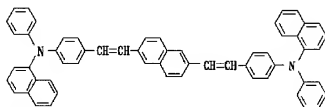
構造式 (38)-5 :



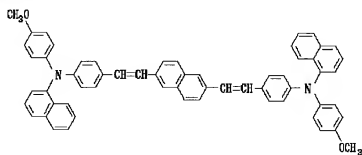
構造式 (38)-6 :



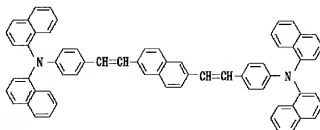
構造式 (38)-7 :



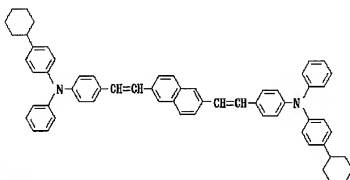
構造式 (38)-8 :



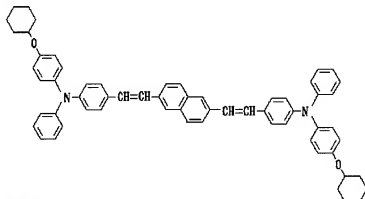
構造式 (38) - 9 :



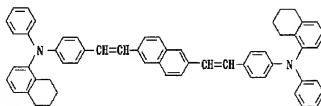
構造式 (38) - 10 :



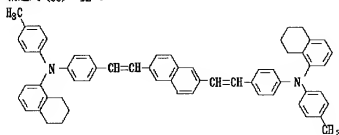
構造式 (38) - 11 :



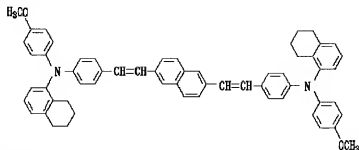
構造式 (38) - 12 :



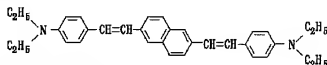
構造式 (38) - 12' :



構造式 (38) - 13 :

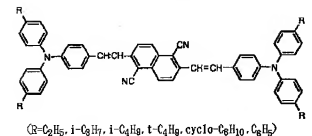
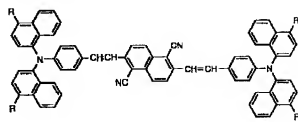
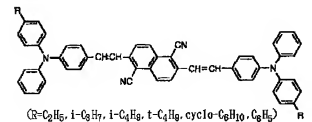
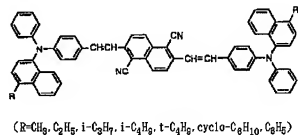
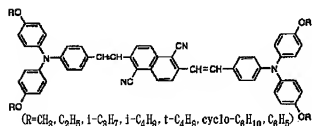
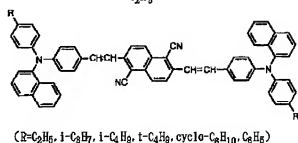
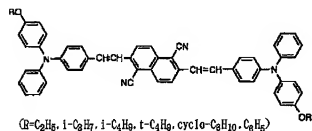


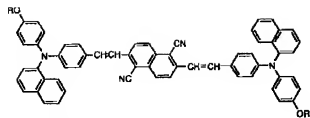
構造式 (38) - 14 :



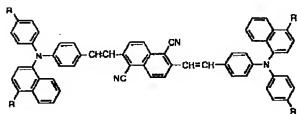
【0019】上記及び上記以外の本発明の化合物として、次の化合物も例示することができる。

【化148】

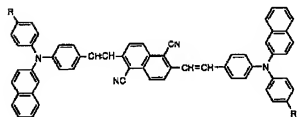




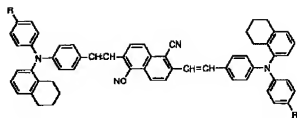
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



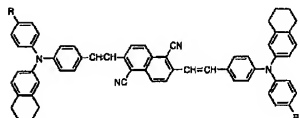
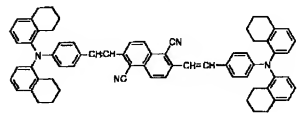
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



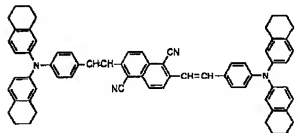
(R=H, CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

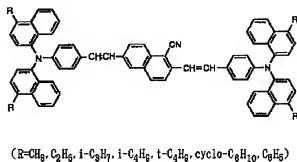
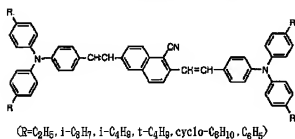
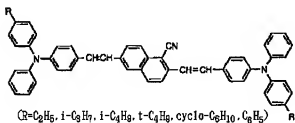
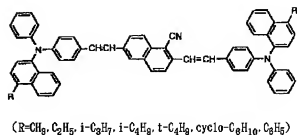
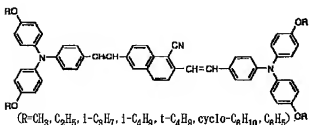
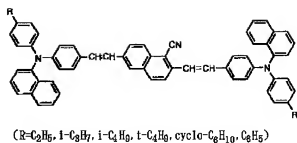
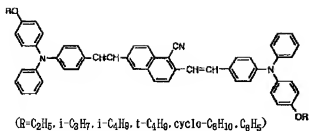


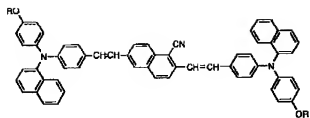
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



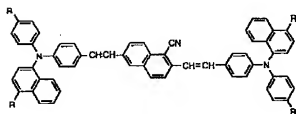
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



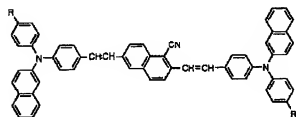




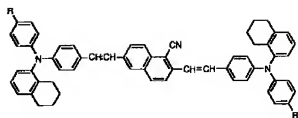
(R=C₂H₅, 1-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



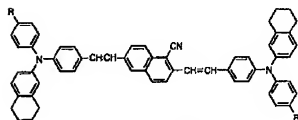
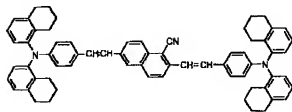
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



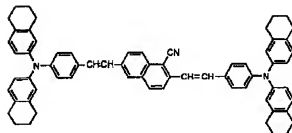
(R=H, CH₃, C₂H₅, 1-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

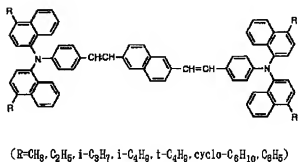
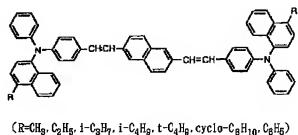
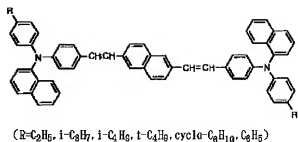
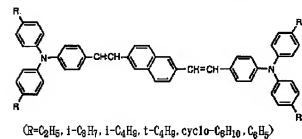
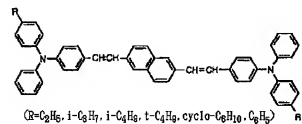
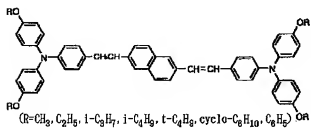
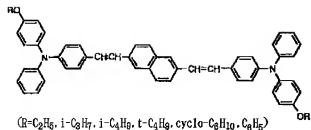


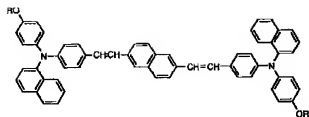
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



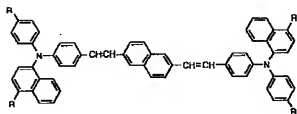
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



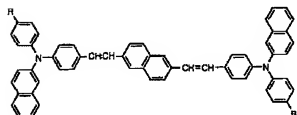




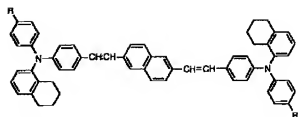
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



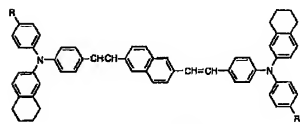
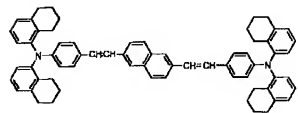
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



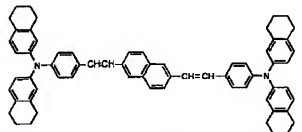
(R=H, CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

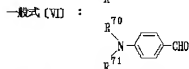
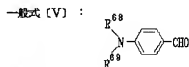


(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



【0020】本発明はまた、本発明の化合物を高効率に製造する方法として、下記一般式〔V〕又は〔VI〕で表される4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式〔VII〕で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式〔VIII〕で表されるジホスホニウムと；を縮合させることによって、前記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で示されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得る、本発明の製造方法も提供するものである。

【化149】

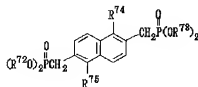


(但し、前記一般式〔V〕及び〔VI〕において、R⁶⁸及びR⁶⁹はそれぞれ、前記R¹、R²、R¹²、R¹³、R²³、R²⁴、R³⁴又はR³⁵に相当するアリール基であ

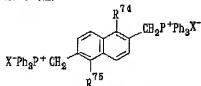
R¹⁵、R²⁵、R²⁶、R³⁶又はR³⁷に相当するアリール基である。)

【化150】

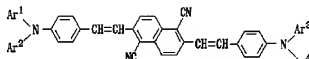
一般式 (VII) :



一般式 (VIII) :



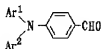
一般式 (8) :



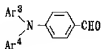
(但し、前記一般式 (6) において、Ar¹、Ar²、Ar³ 及び Ar⁴ はそれぞれ、前記したものと同じである。)、下記一般式 (39) 又は (40) で表される 4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドの少なくとも 1 種と; 下記一般式 (41) で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式 (42) で表されるジホスホニウムと; を縮合させる。

【化152】

一般式 (39) :



一般式 (40) :



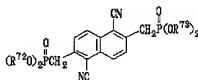
(但し、前記一般式 (VII) 及び (VIII) において、R⁷²及びR⁷³はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基 (特に炭素数が 1~6 の飽和炭化水素基: 以下、同様) であり、R⁷⁴及びR⁷⁵はそれぞれ、前記R⁵、R⁶、R¹⁶、R¹⁷、R²⁷、R²⁸、R³⁸又はR³⁹に相当する基であり、Xはハロゲン原子である。)

【0021】本発明の化合物の製造方法では、具体的には、前記縮合をウィッティヒ-ホーナー (Wittig-Horner) 反応又はウィッティヒ (Wittig) 反応によって行い、前記ジホスホン酸エステル及び/又は前記ジホスホニウムを溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記 4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドとを縮合させるものである。

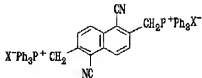
【0022】例えば、下記一般式 (6) で表されるビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物を得るに際し

【化151】

一般式 (41) :



一般式 (42) :

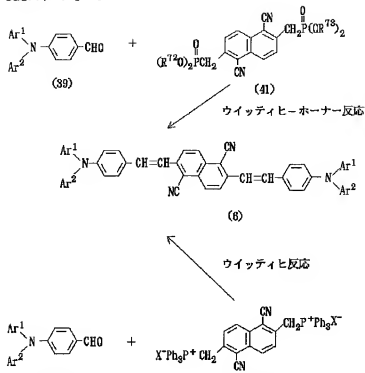


(但し、前記一般式 (39)、(40)、(41) 及び (42) において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと同じである。)

【0023】この反応をスキーム 1 で表すと、例えば次の反応スキーム 1 のようになる。

【化153】

反応スキーム 1 :



【0024】この反応はまず、一般式(39)又は(42)の化合物を適当な溶媒中で塩基と処理することにより、カルボアニオンを発生させることから始まり、次にこのカルボアニオンを一般式(39)のアルデヒドと縮合することにより完結する。塩基と溶媒の組み合わせとしては、以下のものが考えられる。

【0025】水酸化ナトリウム/水、炭酸ナトリウム/水、炭酸カリウム/水、ナトリウムエトキシド/エタノール又はジメチルホルムアミド、ナトリウムメトキシド/メタノール-ジエチルエーテル混合溶媒又はジメチルホルムアミド、トリエチルアミン/エタノール又はジギライム又はクロロホルム又はニトロメタン、ピリジン/塩化メチレン又はニトロメタン、1, 5-ジアザビシクロ[4.3.0] ノン-5-エン/ジメチルスルホキシド、カリウム-*t*-ブトキシド/ジメチルスルホキシド又はテトラヒドロフラン又はベンゼン又はジメチルホルムアミド、フェニルリチウム/ジエチルエーテル又はテトラヒドロフラン、*t*-ブチルリチウム/ジエチルエーテル又はテトラヒドロフラン、ナトリウムアミド/アンモニア、水素化ナトリウム/ジメチルホルムアミド又はテトラヒドロフラン、トリチルナトリウム/ジエチルエーテル又はテトラヒドロフラン等。

【0026】この反応は比較的低温(-30℃~30℃)で進行し、選択的であるため、クロマトグラフィーによる目的物の精製が容易であることに加え、一般式(6)の本発明の化合物は結晶性が高いため、再結晶により純度を向上させることができる。再結晶の方法については、特に問わないが、アセトンに溶解し、ヘキサンを添加する方法、或いはトルエンに加熱溶解し、濃縮、

時間で行つてよい。

【0027】本発明の化合物の製造方法によって、前記一般式(13)、(13')、(14)、(15)、(16)、(17)、(18)、(18')、(19)、(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(26)、(27)、(27')、(28)、(30)、(31)、(32)、(33)、(34)、(35)、(36)、(36')又は(37)で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得ることができ、具体的には、前記構造式(20)-1、(20)-2、(20)-3、(20)-4、(20)-5、(20)-6、(20)-7、(20)-8、(20)-9、(20)-10、(20)-11、(20)-12、(20)-12'、(20)-13、(20)-14、(20)-15、(29)-1、(29)-2、(29)-3、(29)-4、(29)-5、(29)-6、(29)-7、(29)-8、(29)-9、(29)-10、(29)-11、(29)-12、(29)-12'、(29)-13、(29)-14、(29)-15、(38)-1、(38)-2、(38)-3、(38)-4、(38)-5、(38)-6、(38)-7、(38)-8、(38)-9、(38)-10、(38)-11、(38)-12、(38)-12'、(38)-13又は(38)-14で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得ることができる。

【0028】本発明はまた、本発明の化合物の合成中間体として好適な種々の化合物も提供するものである。

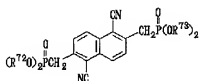
【0029】即ち、前記一般式〔I〕、〔II〕〔III〕

タレン化合物の合成中間体として用いられ、前記一般式〔VII〕で表されるジホスホン酸エステル又は前記一般式〔VIII〕で表されるジホスホニウムである。

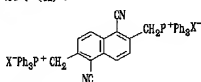
【0030】この合成中間体（以下、本発明の合成中間体1と称する。）は、下記一般式（41）、（42）、（43）、（44）、（45）又は（46）で表される。

【化154】

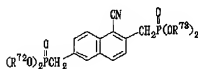
一般式（41）：



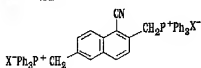
一般式（42）：



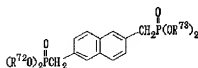
一般式（43）：



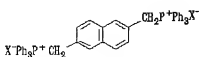
一般式（44）：



一般式（45）：



一般式（46）：



（前記一般式（41）、（42）、（43）、（4

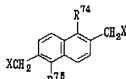
Xは前記したものと同じである。）

【0031】本発明の合成中間体1は、その前駆体としての合成中間体から次のようにして導くことができる。

【0032】即ち、下記一般式〔IX〕で表される、ハロゲン化アリール化合物と、下記一般式〔X〕で表される垂リン酸トリアルキル又はトリフェニルホスフィン（ PPh_3 ）とを反応させることによって、前記一般式〔VI1〕で表されるジホスホン酸エステル、又は前記一般式〔VII1〕で表されるジホスホニウムを合成中間体として得る。この反応は、無溶媒又は120℃以上の沸点を有するキシレン等の溶媒中、又は大過剰の垂リン酸トリアルキル中で反応温度120℃～160℃、常圧で反応時間30分～24時間としてよい。

【化155】

一般式〔IX〕：



（但し、前記一般式〔IX〕において、 R^{74} 及び R^{75} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、Xはハロゲン原子である。）

一般式〔X〕：

$P(OR^{76})_3$ 又は $P(OR^{77})_3$

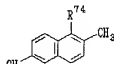
（但し、前記一般式〔X〕において、 R^{76} 及び R^{77} はそれぞれ、同一の又は異なる炭化水素基、特に炭素数1～4の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【0033】本発明はまた、合成中間体1を得るための合成中間体として、前記一般式〔IX〕で表されるハロゲン化アリール化合物（以下、本発明の合成中間体2と称する）も提供するものである。

【0034】本発明の合成中間体2は、下記一般式〔XI〕で表されるジメチルナフタレン化合物と、下記一般式〔XII〕で表されるN-ハロゲン化スクシンイミドとを光照射下に反応させることによって得ることができる。例えば、四塩化炭素、クロホルム、ベンゼン、クロロベンゼン等の溶媒中、高圧水銀灯、低圧水銀灯、キセノン灯、ハロゲン灯、日光、蛍光灯等の光源を用いて20～120℃の温度、常圧で30分～48時間の反応時間で反応させる。

【化156】

一般式〔XI〕：



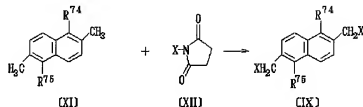
(但し、前記一般式〔XI〕において、R⁷⁴及びR⁷⁵はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが酸素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である。)

【化157】

一般式〔XII〕：



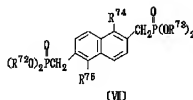
反応スキーム 2：



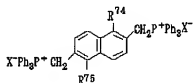
(XI)

(XII)

(XIX)



(VI)



(VII)

【0037】図6～図9は、本発明の化合物を有機発光材料として用いる有機電界発光素子(EL素子)の例をそれぞれ示すものである。

【0038】図6は、陰極3を発光20が透過する透過型有機電界発光素子Aであって、発光20は保護層4の側からも観測できる。図7は陰極3での反射光も発光20として得る反射型有機電界発光素子Bを示す。

【0039】図中、1は有機電界発光素子を形成するための基板であり、ガラス、プラスチック及び他の適宜の材料を用いることができる。また、有機電界発光素子を他の表示素子と組み合わせて用いる場合には、基板を共用することもできる。2は透明電極(陽極)であり、ITO(Indium tin oxide)、SnO₂等を使用できる。

【0040】また、5は有機発光層であり、本発明の化合物を発光材料として含有している。この発光層について、有機電界発光20を得る層構成としては、従来公知の種々の構成を用いることができる。後述するように、例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれかを構成する材料が発光性を有する場合、これらの薄膜を積層した構造を使用できる。更に、本発明の目的を満たす範囲で電

(但し、前記一般式〔XII〕において、Xはハロゲン原子である。)

【0035】以上に述べた各合成中間体1、2をそれぞれ得る反応は、例えば次の反応スキーム2で示すことができる。

【0036】

【化158】

いずれかもしくは両方が、複数種の材料の薄膜を積層した構造、又は、複数種の材料を混合した組成からなる薄膜を使用するのを妨げない。また、発光性を上げるために、少なくとも1種以上の蛍光性の材料を用いて、この薄膜を正孔輸送層と電子輸送層の間に挟持した構造、更に、少なくとも1種以上の蛍光性の材料を正孔輸送層若しくは電子輸送層、又はこれらの両方に含ませた構造を使用しても良い。これらの場合には、発光効率を改善するために、正孔又は電子の輸送を制御するための薄膜をその層構成に含ませることも可能である。

【0041】本発明の化合物が、電子輸送性能と正孔輸送性能の両方を持つ場合、素子構成中、電子輸送層を兼ねた発光層としても、或いは正孔輸送層を兼ねた発光層としても用いることが可能である。また、本発明の化合物を発光層として、電子輸送層と正孔輸送層とで挟み込んだ構成とすることも可能である。

【0042】なお、図6及び図7中、3は陰極であり、電極材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金、或いはこれらを積層した構造を使用できる。透過型の有機電界発光素子に

った光透過率を得ることができる。また、図中、4は封止・保護層であり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることにより、その効果が上がる。気密性が保たれれば、適宜の材料を使用することができる。また、8は電流注入用の駆動電源である。

【0043】この有機電界発光素子において、有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造（シングルヘテロ構造）を有しており、正孔輸送層又は電子輸送層の形成材料として本発明の化合物が用いられてよい。或いは、有機層が、正孔輸送層と発光層と電子輸送層とが順次積層された有機積層構造（ダブルヘテロ構造）を有しており、発光層の形成材料として、本発明の化合物が用いられてよい。

【0044】このような有機積層構造を有する有機電界発光素子の例を示すと、図8は、透光性の基板1上に、透光性の陰極2と、正孔輸送層6と電子輸送層7とからなる有機層5aと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてなる、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子Cである。

【0045】図8に示すように、発光素子を省略した層構造の場合には、正孔輸送層6と電子輸送層7の界面から所定波長の発光20を発生する。これらの発光は基板1側から観測される。

【0046】また、図9は、透光性の基板1上に、透光性の陰極2と、正孔輸送層10と発光層11と電子輸送層12とからなる有機層5bと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてなる、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子Dである。

【0047】図9に示した有機電界発光素子においては、陰極2と陰極3の間に直流電圧を印加することにより、陰極2から注入された正孔が正孔輸送層10を経て、また陰極3から注入された電子が電子輸送層12を経て、それぞれ発光層11に到達する。この結果、発光層11においては電子/正孔の再結合が生じて一重項励起子が生成し、この一重項励起子から所定波長の発光を発生する。

【0048】上述した各有機電界発光素子C、Dにおいては、基板1は、例えば、ガラス、プラスチック等の光透過性の材料を適宜用いることができる。また、他の表示素子と組み合わせる場合や、図8及び図9に示した積層構造をマトリックス状に配置する場合等は、この基板を共用してよい。また、素子C、Dはいずれも、透過型、反射型のいずれの構造も採りうる。

【0049】また、陰極2は、透明電極であり、ITO（indium tin oxide）や SnO_2 等が使用できる。この陰極2と正孔輸送層6（又は正孔輸送層10）との間には、電荷の注入効率を改善する目的で、有機物若しくは有機金属化合物からなる薄膜を設けてもよい。なお、保

陽極2の側面に絶縁膜が設けられていてもよい。

【0050】また、有機電界発光素子Cにおける有機層5aは、正孔輸送層6と電子輸送層7とが積層された有機層であり、これらのいずれか又は双方に上記した本発明の化合物が含有され、発光性の正孔輸送層6又は電子輸送層7としてよい。有機電界発光素子Dにおける有機層5bは、正孔輸送層10と上記した本発明の化合物を含有する発光層11と電子輸送層12とが積層された有機層であるが、その他、種々の積層構造をとることができる。例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方が発光性を有していてもよい。

【0051】また、特に、正孔輸送層6又は電子輸送層7や発光層11が本発明の化合物からなることが望ましいが、これらの層を本発明の化合物のみで形成してもよく、あるいは、本発明の化合物と他の正孔又は電子輸送材料（例えば、芳香族ニッケルやピラゾリン類等）との共蒸着によって形成してもよい。さらに、正孔輸送層において、正孔輸送性能を向上させるために、複数種の正孔輸送材料を積層した正孔輸送層を形成してもよい。

【0052】また、有機電界発光素子Cにおいて、発光層は電子輸送性発光層7であってよいが、電源8から印加される電圧によっては、正孔輸送層6やその界面で発光される場合がある。同様に、有機電界発光素子Dにおいても、発光層は層11以外に、電子輸送層12であってもよく、正孔輸送層10であってもよい。発光性能を向上させるために、少なくとも1種の蛍光性材料を用いた発光層11を正孔輸送層10と電子輸送層12との間に挟持させた構造であるのがよい。又は、この蛍光性材料を正孔輸送層又は電子輸送層、或いはこれらの両層に含有させた構造を構成してよい。このような場合、発光効率を改善するために、正孔又は電子の輸送を制御するための薄膜（ホールブロッキング層やエキシトン生成層等）をその層構成に含ませることも可能である。

【0053】また、陰極3に用いる材料として、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金を使用でき、これらの金属層が積層した構造であってもよい。なお、陰極の厚みや材質を適宜選択することによって、用途に見合った有機電界発光素子を作製できる。

【0054】また、保護膜4は、封止膜として作用するものであり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることにより、電荷注入効率や発光効率を向上できる。なお、その気密性が保たれれば、アルミニウム、金、クロム等の単金属又は合金等、適宜その材料を選択できる。

【0055】上記した各有機電界発光素子に印加する電流は通常、直流であるが、パルス電流や交流を用いてもよい。電流値、電圧値は、素子破壊しない範囲内であれば特に制限はないが、有機電界発光素子の消費電力や寿命を考慮すると、なるべく小さい電気エネルギーで効率

【0056】次に、図10は、有機電界発光素子を用いた平面ディスプレイの構成図である。図示のごとく、例えばフルカラーディスプレイの場合は、赤（R）、緑（G）及び青（B）の3原色を発光可能な有機層5（5a、5b）が、陰極3と陽極2との間に配されている。陰極3及び陽極2は、互いに交差するストライプ状に設けることができ、輝度信号回路14及びシフトレジスタ内蔵の制御回路15により選択されて、それぞれに信号電圧が印加され、これによって、選択された陰極3及び陽極2が交差する位置（画素）の有機層が発光するように構成される。

【0057】即ち、図10は例えば8×3RGB単純マトリックスであって、正孔輸送層と、発光層及び電子輸送層のいずれか少なくとも一方とからなる積層層5を陰極3と陽極2の間に配置したものである（図8又は図9参照）。陰極と陽極は、ともにストライプ状にパターンニングするとともに、互いにマトリックス状に直交させ、

シフトレジスタ内蔵の制御回路15及び14により時系列的に信号電圧を印加し、その交差位置で発光するように構成されたものである。かかる構成のEL素子は、文字・記号等のディスプレイとしてはもちろん、画像再生装置としても使用できる。また、陰極3と陽極2のストライプ状パターンを赤（R）、緑（G）、青（B）の各色毎に配し、マルチカラー或いはフルカラーの全固体型フラットパネルディスプレイを構成することが可能となる。

【0058】

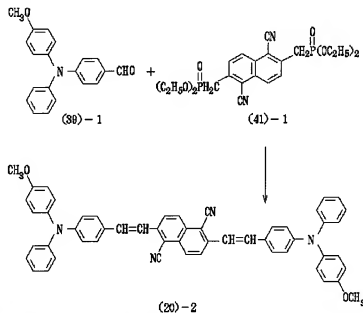
【実施例】以下、本発明の実施例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0059】実施例1

<ビス（アミノステリル）ナフタレン化合物（構造式（20）-2）の合成例>

【0060】

【化159】



【0061】反応容器に水素化ナトリウム（ミネラルオイル入り）10.2mmolを計り取り、窒素雰囲気下で無水テトラヒドロフラン（THF）10mlに懸濁させた。室温で攪拌しながら、ジホスホン酸エステル（構造式（41）-1）1.72mmolの無水テトラヒドロフランと無水ジメチルホルムアミド（DMF）の1：1混合溶液80mlを滴下し、続いて4-[N-フェニル-N-（4-メトキシフェニル）アミノ]ベンズアルデヒド（構造式（39）-1）1.27g（4.19mmol）の無水テトラヒドロフラン溶液30mlを滴下して、10時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

【0062】シリカゲルクロマトグラフィー（WAKO-ugel 2 C-300、テトラヒドロフラン：ヘキサン＝1：8）により精製し、アセトン-ヘキサンから再結

晶することにより、目的物であるビス（アミノステリル）ナフタレン化合物（構造式（20）-2）の赤色結晶0.273gを得た。

【0063】¹H NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同一した（収率20％）。

¹H NMR（CDCl₃）δ（ppm）：3.83(6H,s), 6.87(4H,d), 6.89-7.14(12H,m), 7.25-7.53(14H,m), 8.03(2H,d), 8.31(2H,d)

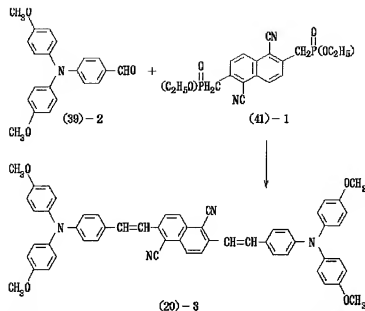
この¹H NMRスペクトルは図1に示す通りであった。ガラス転移点は120℃、融点は272℃であった。

【0064】トルエン溶液の可視吸収最大は493nm、蛍光極大波長は545nmであった。

【0065】実施例2

<ビス（アミノステリル）ナフタレン化合物（構造式（20）-3）の合成例>

【化160】



【0066】反応容器に水素化ナトリウム（ミネラルオイル入り）7.50mmolを計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水THFとジメチルホルムアミド（DMF）の1：1混合溶液20mlに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でホスホン酸エステル（構造式（41）-1）0.720g（1.51mmol）と4-〔N,N-ジ（4-メトキシフェニル）アミノ〕ベンズアルデヒド（構造式（39）-2）1.16g（3.61mmol）の無水THFとDMFの1：1混合溶液100mlを15分かけて滴下し、その後、氷浴上で6時間攪拌し、室温にて更に6時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、 Na_2SO_4 上で乾燥した。上澄みを濃縮して水を添加し、生じた沈殿をろ別し、エタノール（EtOH）で繰り返し洗った。

【0067】得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー（WAKO-gel C-300、トルエン：TH

F = 10：1）により精製し、トルエンから再結晶して、目的物であるビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物（構造式（20）-3）の赤色結晶0.731gを得た。

【0068】 $^1\text{H NMR}$ 及びFAB-MS測定により、目的物と同一した（収率58%）。

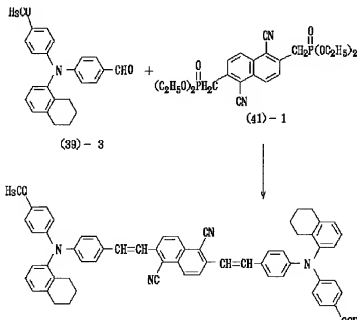
$^1\text{H NMR}$ （ CDCl_3 ） δ （ppm）：3.82（12H,s）,6.86（12H,m）,7.10（8H,d）,7.43（8H,m）,8.01（2H,d）,8.29（2H,d）この $^1\text{H NMR}$ スペクトルは図2に示す通りであった。ガラス転移点は140℃、融点は227℃であった。

【0069】トルエン溶液の可視吸収極大は502nm、蛍光極大波長は565nmであった。

【0070】実施例3

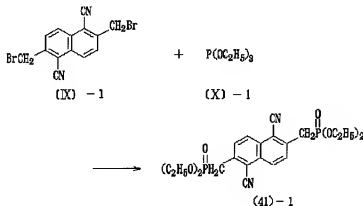
<ビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物（構造式（20）-13）の合成例>

【化161】



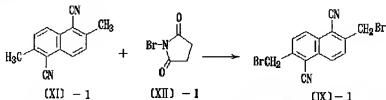
【0071】反応容器に水酸化ナトリウム（ミネラルオイル入り）5.15mmolを計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水THFとDMFの3：1混合溶液5mlに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でホスホン酸エステル（構造式（41）-1）0.410g（0.858mmol）と4-〔N, N-（4-メトキシフェニル-1-（2, 3, 4, 5-テトラヒドロナフチルアミノ））ベンズアルデヒド（構造式（39）-3）0.700g（2.06mmol）の無水THFとDMFの3：1混合溶液50mlを15分かけて滴下し、その後、氷浴上で6時間攪拌し、室温にて更に12時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、 Na_2SO_4 上で乾燥した。

【0072】シリカゲルクロマトグラフィー（WAKO-ge1 C-300, トルエン）により精製し、トルエンから再結晶して目的物であるビス（アミノスチリ



【0077】2, 6-ジ（プロモメチル）ナフタレン-1, 5-ジカルボニトリル（構造式〔IX〕-1）0.625g（1.72mmol）をキシレン40mlに懸濁させ、亜リン酸トリエチル（構造式〔X〕-1）1.80g（10.8mmol）を滴下後、125℃で4時間攪拌した。反応溶液を室温まで冷却し、ヘキサン100mlを添加して静置し、生じた沈殿をろ別してヘキサンで繰り返し洗い、目的とするジホスホン酸エステル（構造式（41）-1）を定量的に得た。

【0078】¹H NMR及びFAB-MS測定により、



【0081】2, 6-ジメチルナフタレン-1, 5-ジカルボニトリル（構造式〔XI〕-1）2.00g（9.70mmol）をクロロホルム250mlに溶解し、窒素置換した後、還流しながらN-プロモスクシニミド（構造式〔XII〕-1）13.6g（76.6mmol）を12時間ごとに6回に分けて添加した。

【0082】反応溶液を濃縮してアルミナクロマトグラ

ルナフタレン化合物（構造式（20）-13）の赤色結晶0.465gを得た。

【0073】¹H NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同一した（収率61%）。

¹H NMR（ CDCl_3 ） δ (ppm): 1.72(8H, s), 2.42(4H, s), 2.83(4H, s), 3.80(6H, m), 6.79-6.85(8H, m), 6.86-7.23(10H, m), 7.34-7.50(6H, m), 8.00(2H, d), 8.29(2H, d)

この¹H NMRスペクトルは図3に示す通りであった。ガラス転移点は135℃、融点は245℃であった。

【0074】トルエン溶液の可視吸収最大は496nm、蛍光極大波長は540nmであった。

【0075】実施例4

<ジホスホン酸エステル（構造式（41）-1）の合成例>

【0076】

【化162】

目的物と同一した。

¹H NMR（ CDCl_3 ） δ (ppm): 1.33(12H, t), 3.63(4H, d), 4.14(8H, q), 7.84(2H, d), 8.42(2H, d)

この¹H NMRスペクトルは図4に示す通りであった。

【0079】実施例5

<2, 6-ジ（プロモメチル）ナフタレン-1, 5-ジカルボニトリル（構造式〔IX〕-1）の合成例>

【0080】

【化163】

により精製し、生じた沈殿をろ別してヘキサンで繰り返し洗い、トルエンから再結晶して、目的物である2, 6-ジ（プロモメチル）ナフタレン-1, 5-ジカルボニトリル（構造式〔IX〕-1）の黄色結晶1.32gを得た。

【0083】¹H NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同一した（収率38%）。

d), 8.47 (4H, d)

この¹H NMRスペクトルは図5に示す通りであった。

【0084】

【発明の作用効果】本発明の化合物は、導入される置換基に依存して、黄色～赤色の強い発光を示す有機発光材料として有効に利用することができ、高いガラス転移点及び融点を有する物質であり、耐熱性に優れると共に、電気的、熱的或いは化学的な安定性に優れ、また非晶質でガラス状態を容易に形成し得、昇華性もあって真空蒸着等によって均一なアモルファス膜を形成することもできる。また、本発明の化合物は、本発明の合成中間体を経て一般的かつ高効率な方法で製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のビス(アミノステリル)ナフタレン化合物(構造式(20)-2)の¹H NMRスペクトル図である。

【図2】本発明のビス(アミノステリル)ナフタレン化合物(構造式(20)-3)の¹H NMRスペクトル図である。

【図3】本発明のビス(アミノステリル)ナフタレン化合物(構造式(20)-13)の¹H NMRスペクトル図である。

【図4】本発明の合成中間体としてのジホスホン酸エス

テル(構造式(41)-1)の¹H NMRスペクトル図である。

【図5】本発明の合成中間体としての2, 6-ジ(プロモメチル)ナフタレン-1, 5-ジカルボニトリル(構造式[IX]-1)の¹H NMRスペクトル図である。

【図6】本発明に基づく有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図7】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図8】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

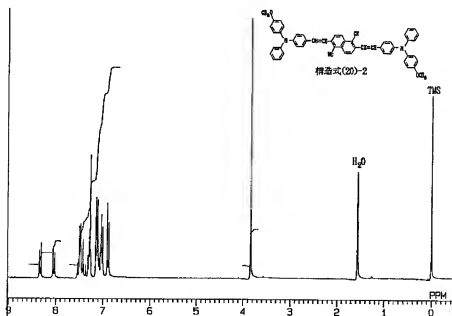
【図9】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図10】同、有機電界発光素子を用いたマルチ又はフルカラーの平面ディスプレイの構成図である。

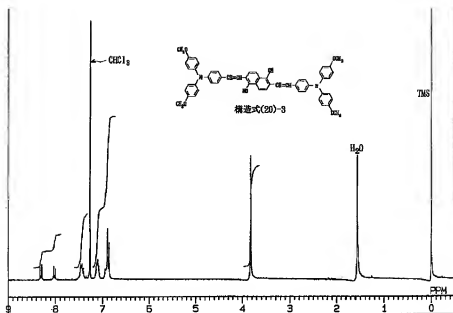
【符号の説明】

1…基板、2…透明電極(陽極)、3…陰極、4…保護膜、5、5 a、5 b…有機層、6…正孔輸送層、7…電子輸送層、8…電源、10…正孔輸送層、11…発光層、12…電子輸送層、14…輝度信号回路、15…制御回路、20…発光光、A、B、C、D…有機電界発光素子

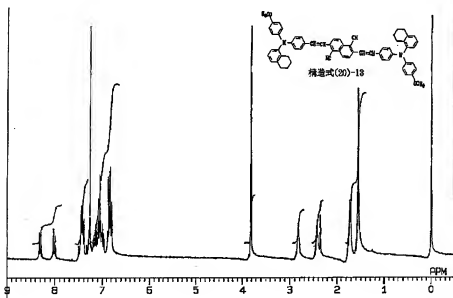
【図1】



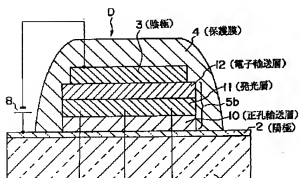
【図2】



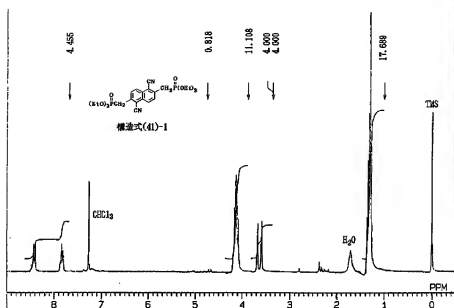
【図3】



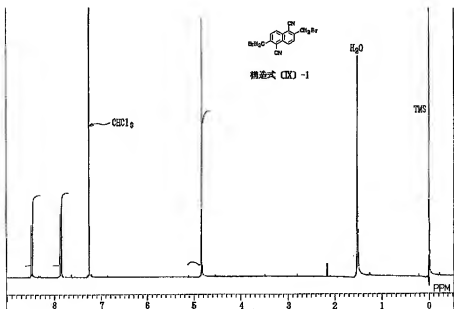
【図9】



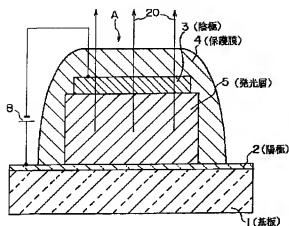
【图 4】



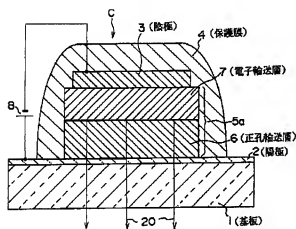
【图 5】



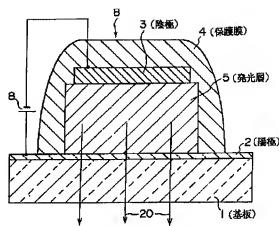
【図6】



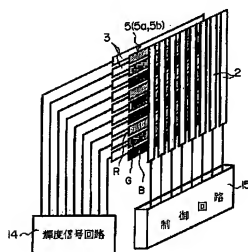
【図8】



【図7】



【図10】



フロントページの続き

(51)Int. Cl.⁷ 識別記号
H 0 5 B 33/14

F I
H 0 5 B 33/14

テーマコード(参考)
B

(72)発明者 田村 眞一郎
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB12 AB14 AB18
BA06 BB00 CA01 CA05 CB01
DA00 DB03 EB00 FA01
4H006 AA01 AA02 AC22 AC25 AC30
4H050 AA01 AB81 WA13 WA26

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第2区分

【発行日】平成17年8月11日(2005. 8. 11)

【公開番号】特開2001-106658(P2001-106658A)

【公開日】平成13年4月17日(2001. 4. 17)

【出願番号】特願平11-285255

【国際特許分類第7版】

C07C211/54

C07C255/58

C07F 9/40

C07F 9/54

C09K 11/06

H05B 33/14

【F I】

C07C211/54

C07C255/58

C07F 9/40

E

C07F 9/54

C09K 11/06

625

H05B 33/14

B

【手続補正書】

【提出日】平成17年1月21日(2005. 1. 21)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】発明の名称

【補正方法】変更

【補正の内容】

【発明の名称】ビス(アミノステリル)ナフタレン化合物及びその合成中間体、これらの製造方法、有機電界発光素子

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

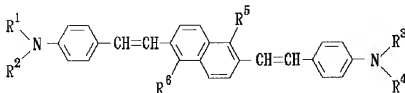
【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物。

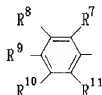
一般式〔I〕:



R⁴は下記一般式（1）で表されるアリール基であり

【化2】

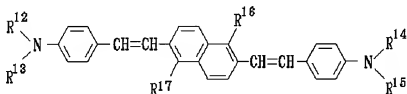
一般式（1）：



（但し、前記一般式（1）において、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰及びR¹¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）、R⁵及びR⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である（但し、R⁵及びR⁶が共に水素原子である場合を除く。）。）

【化3】

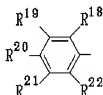
一般式〔II〕：



〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹²、R¹³、R¹⁴及びR¹⁵は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（2）で表されるアリール基であり

【化4】

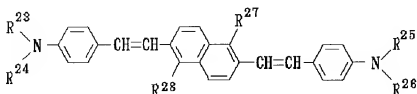
一般式（2）：



（但し、前記一般式（2）において、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰、R²¹及びR²²は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である（但し、R¹⁶及びR¹⁷が共に水素原子である場合を除く。）。）

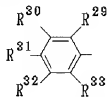
【化5】

一般式〔III〕：



【化6】

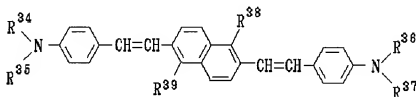
一般式(3) :



(但し、前記一般式(3)において、R²⁹、R³⁰、R³¹、R³²及びR³³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R²⁷及びR²⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である(但し、R²⁷及びR²⁸が共に水素原子である場合を除く。)

【化7】

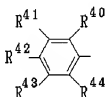
一般式(IV) :



(但し、前記一般式(IV)において、R³⁵及びR³⁶は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(4)で表されるアリール基であり

【化8】

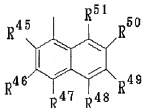
一般式(4) :



(但し、前記一般式(4)において、R⁴⁰、R⁴¹、R⁴²、R⁴³及びR⁴⁴は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R³⁴及びR³⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(5)で表されるアリール基であり

【化9】

一般式(5) :



(但し、前記一般式(5)において、R⁴⁵、R⁴⁶、R⁴⁷、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰及びR⁵¹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数1以

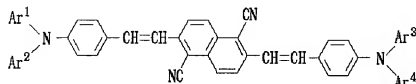
子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である（但し、R³⁸及びR³⁹が共に水素原子である場合を除く。）。

【請求項 2】

下記一般式（6）で表されるビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物。

【化 10】

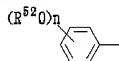
一般式（6）：



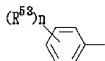
〔但し、前記一般式（6）において、A r¹、A r²、A r³及びA r⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式（7）、（8）、（9）、（10）、（11）、（12）、（12'）又は（12''）で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 11】

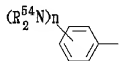
一般式（7）：



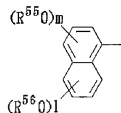
一般式（8）：



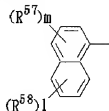
一般式（9）：



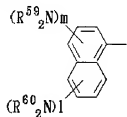
一般式（10）：



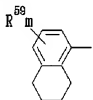
一般式 (11) :



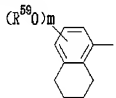
一般式 (12) :



一般式 (12') :



一般式 (12'') :



(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、 R^{52} 、 R^{53} 及び R^{54} は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0～6 の整数であり、 m は 0～3 の整数であり、 l は 0～4 の整数である。)

【請求項 3】

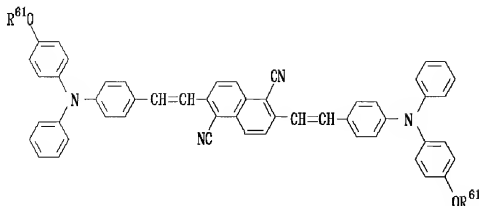
前記 R^{52} 、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} の炭素数が 1～6 である、請求項 2 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

【請求項 4】

下記一般式 (13)、(13')、(14)、(15)、(16)、(17)、(18)、(18')、(19)、(19-1)、(19-2) 又は (19-3) で表される、請求項 1 又は 2 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物。

【化 1 2】

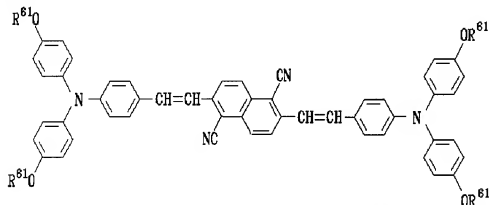
一般式 (13) :



(但し、前記一般式 (1 3) において、R⁶¹は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 3】

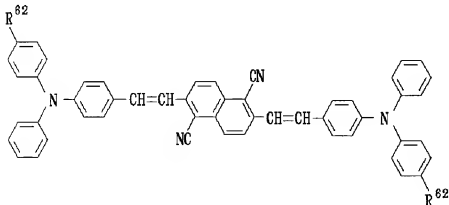
一般式 (13') :



(但し、前記一般式 (1 3') において、R⁶¹は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 4】

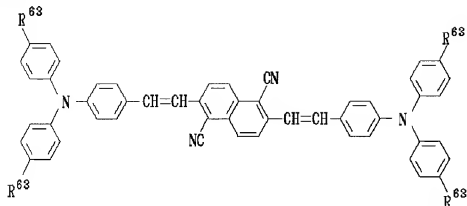
一般式 (14) :



(但し、前記一般式 (1 4) において、R⁶²は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 5】

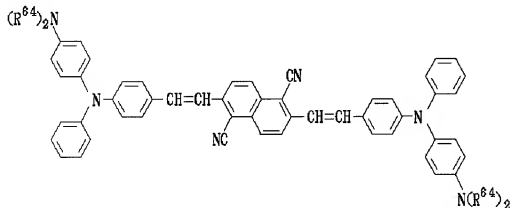
一般式 (15) :



(但し、前記一般式 (1 5) において、 R^{63} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 6】

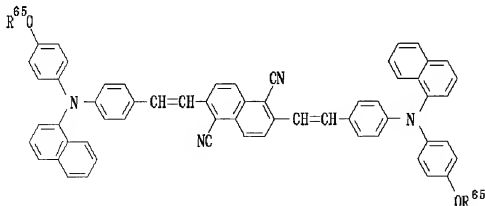
一般式 (16) :



(但し、前記一般式 (1 6) において、 R^{64} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 7】

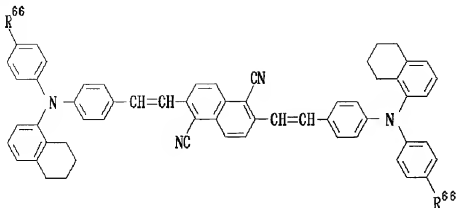
一般式 (17) :



(但し、前記一般式 (1 7) において、 R^{65} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 18】

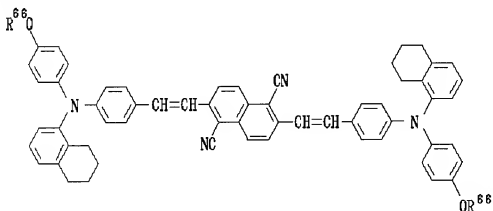
一般式 (18):



(但し、前記一般式 (18) において、R⁶⁶は水素原子又は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 19】

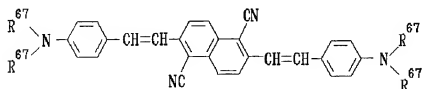
一般式 (18'):



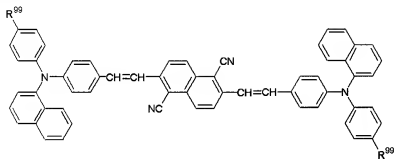
(但し、前記一般式 (18') において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 20】

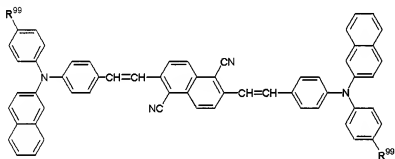
一般式 (19):



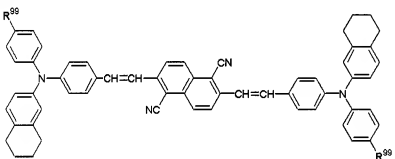
一般式 (19-1) :



一般式 (19-2) :



一般式 (19-3) :



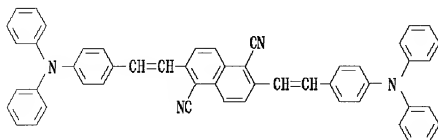
(但し、前記一般式 (19)、(19-1)、(19-2)、(19-3) において、R⁹⁹は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項5】

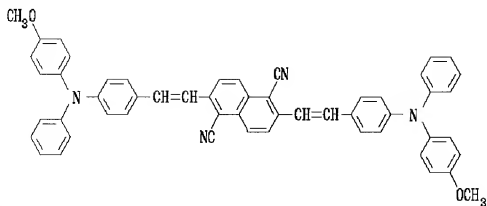
下記構造式 (20)-1、(20)-2、(20)-3、(20)-4、(20)-5、(20)-6、(20)-7、(20)-8、(20)-9、(20)-10、(20)-11、(20)-12、(20)-12'、(20)-13、(20)-14、(20)-15、(20)-16、(20)-17又は(20)-18で表される、請求項1又は2に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物。

【化21】

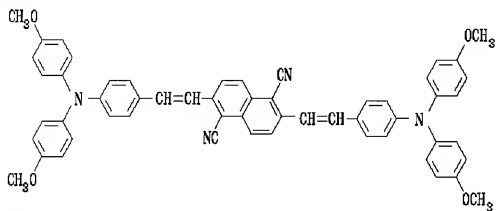
構造式 (20)-1 :



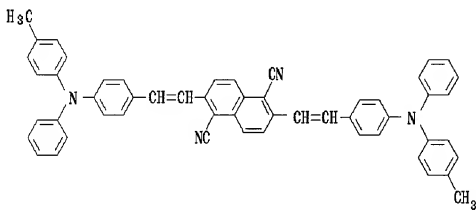
構造式 (20) - 2 :



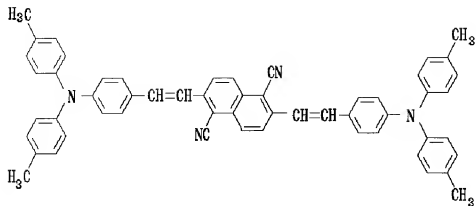
構造式 (20) - 3 :



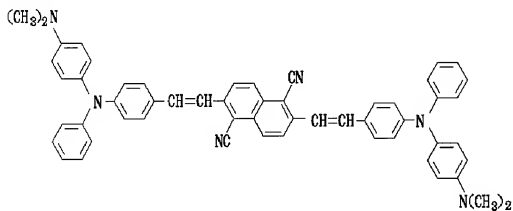
構造式 (20) - 4 :



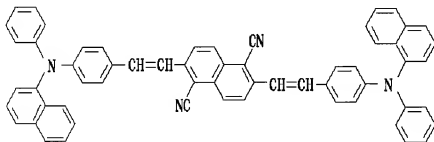
構造式 (20)-5 :



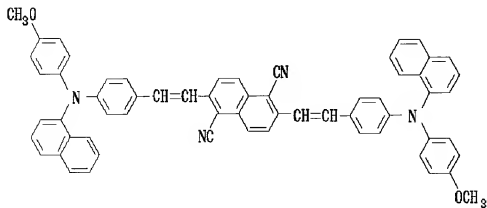
構造式 (20)-6 :



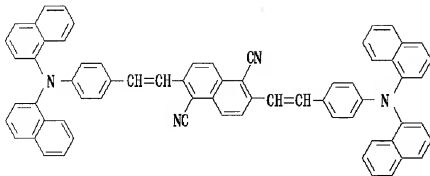
構造式 (20)-7 :



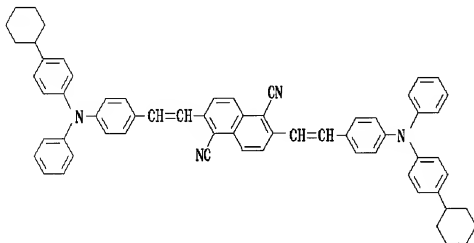
構造式 (20)-8 :



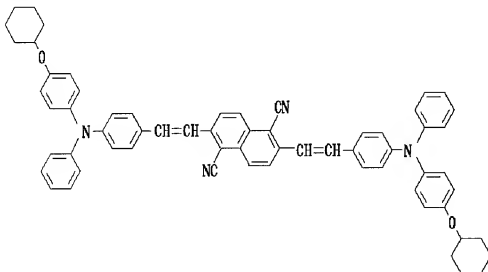
構造式 (20) - 9 :



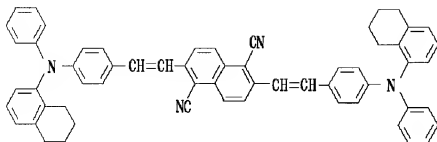
構造式 (20) - 10 :



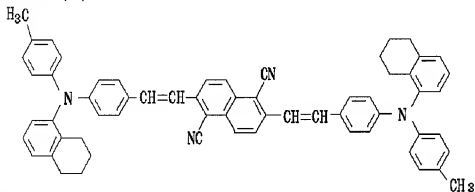
構造式 (20) - 11 :



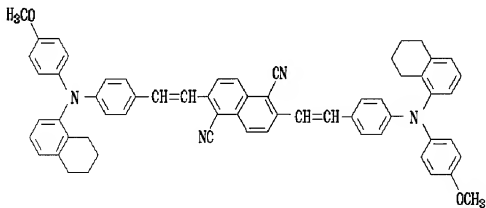
構造式 (20)-12 :



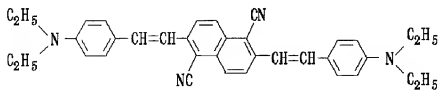
構造式 (20)-12' :



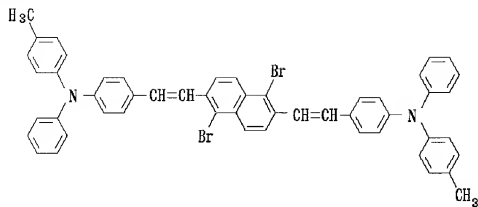
構造式 (20)-13 :



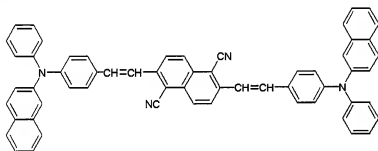
構造式 (20)-14 :



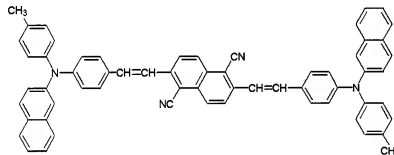
構造式 (20) - 15 :



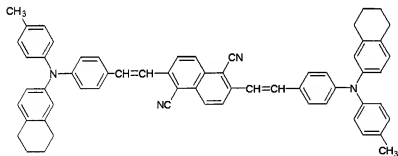
一般式 (20) - 16 :



一般式 (20) - 17 :



一般式 (20) - 18 :

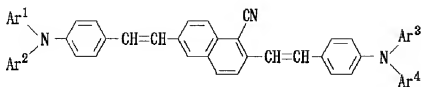


【請求項6】

下記一般式 (21) で表されるビス (アミノステリル) ナフタレン化合物。

[illegible]

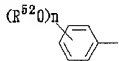
一般式 (21) :



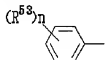
〔但し、前記一般式(21)において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12')又は(12'')で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 2 3】

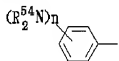
一般式 (7) :



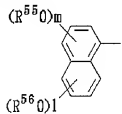
一般式 (8) :



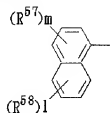
一般式 (9) :



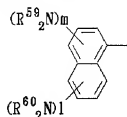
一般式 (10) :



一般式(11)：



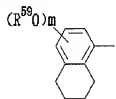
一般式(12)：



一般式(12')：



一般式(12'')：



(但し、前記一般式(7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12')及び(12'')において、 R^{52} 、 R^{53} 及び R^{54} は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} は互いに同一の又は異なる炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は0～6の整数であり、 m は0～3の整数であり、 l は0～4の整数である。)

【請求項7】

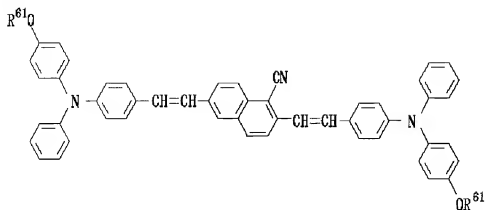
前記 R^{52} 、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 、 R^{59} 及び R^{60} の炭素数が1～6である、請求項6に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物。

【請求項8】

下記一般式(22)、(23)、(24)、(25)、(26)、(27)、(27')、(28)、(28-1)、(28-2)又は(28-3)で表される、請求項1又は6に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物。

【化 2 4】

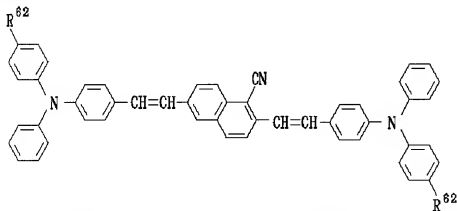
一般式 (22) :



(但し、前記一般式 (2 2) において、R⁶¹は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 2 5】

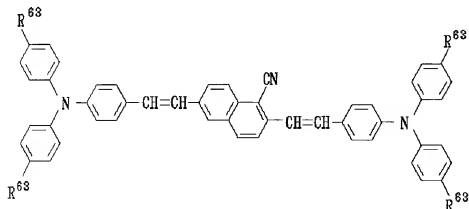
一般式 (23) :



(但し、前記一般式 (2 3) において、R⁶²は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 2 6】

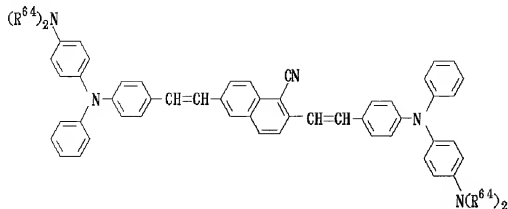
一般式 (24) :



(但し、前記一般式 (2 4) において、R⁶³は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。)

【化 27】

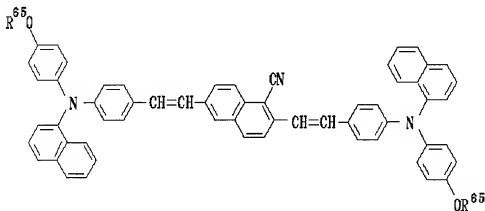
一般式 (25) :



(但し、前記一般式 (25) において、 R^{64} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 28】

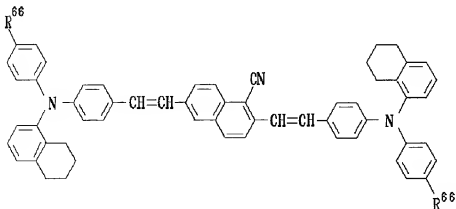
一般式 (26) :



(但し、前記一般式 (26) において、 R^{65} は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 29】

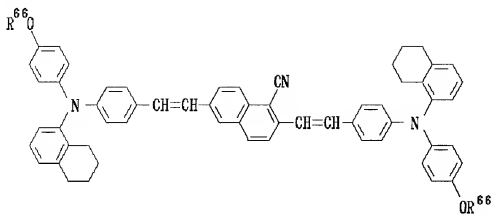
一般式 (27) :



(但し、前記一般式 (27) において、 R^{66} は水素原子又は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化30】

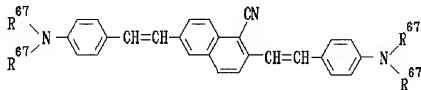
一般式(27'):



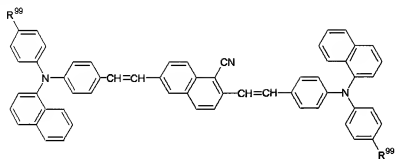
(但し、前記一般式(27')において、R⁶⁶は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化31】

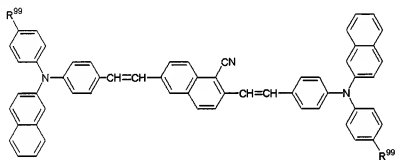
一般式(28):



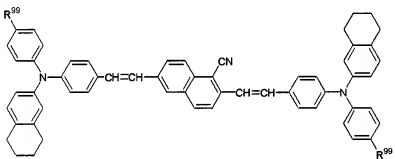
一般式 (28-1) :



一般式 (28-2) :



一般式 (28-3) :



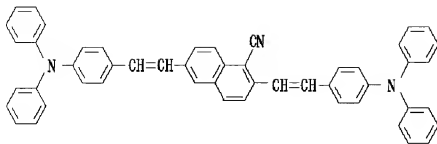
(但し、前記一般式 (28)、(28-1)、(28-2)、(28-3) において、R⁹⁹は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項 9】

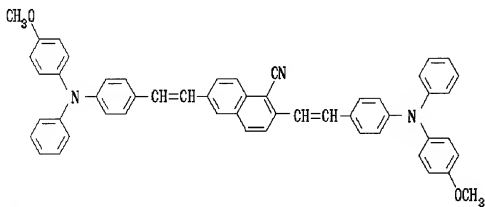
下記構造式 (29)-1、(29)-2、(29)-3、(29)-4、(29)-5、(29)-6、(29)-7、(29)-8、(29)-9、(29)-10、(29)-11、(29)-12、(29)-12'、(29)-13、(29)-14、(29)-15、(29)-16、(29)-17又は(29)-18で表される、請求項 1 又は 6 に記載したビス (アミノステリル) ナフタレン化合物。

[illegible]

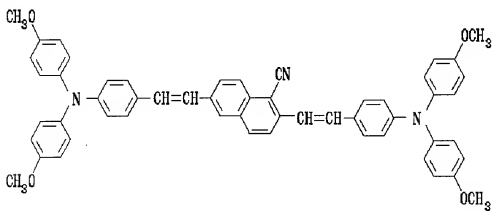
構造式 (29) - 1 :



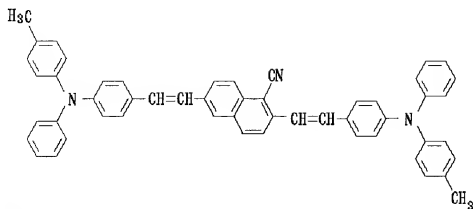
構造式 (29) - 2 :



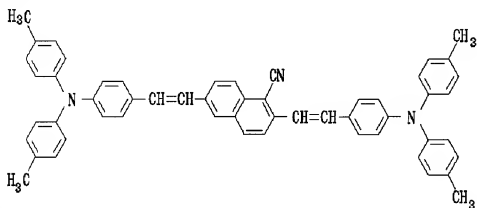
構造式 (29) - 3 :



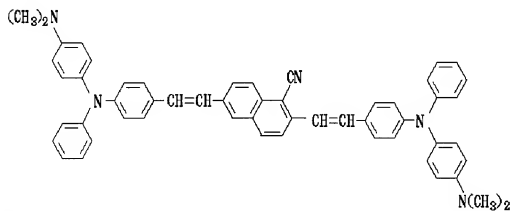
構造式 (29) - 4 :



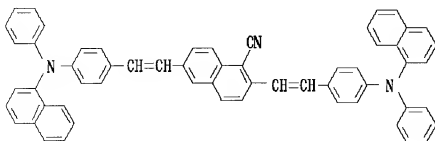
構造式 (29) - 5 :



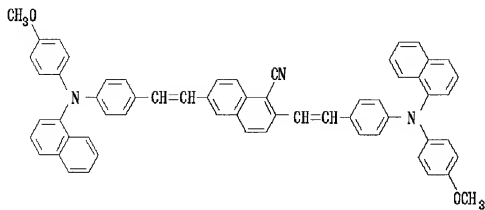
構造式 (29) - 6 :



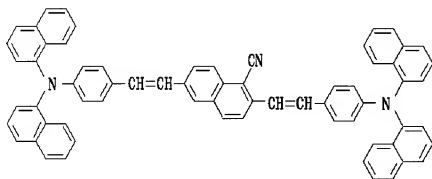
構造式 (29) - 7 :



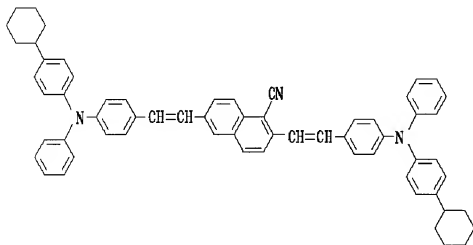
構造式 (29) - 8 :



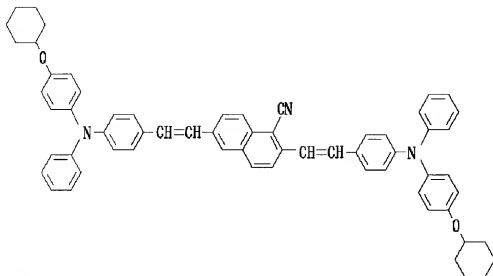
構造式 (29) - 9 :



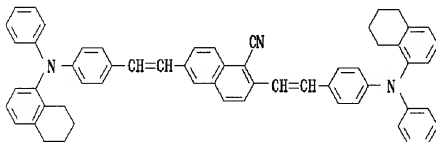
構造式 (29) - 10 :



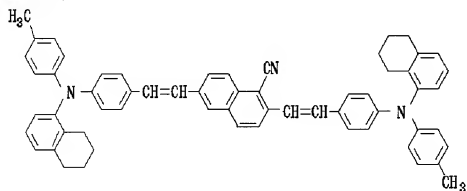
構造式 (29)-11 :



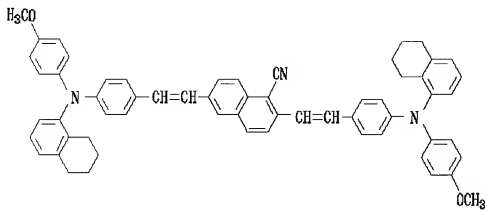
構造式 (29)-12 :



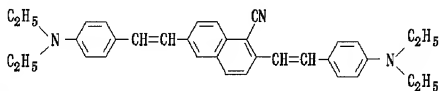
構造式 (29)-12' :



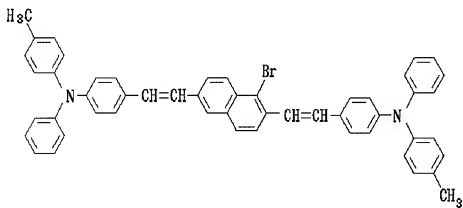
構造式 (29) - 13 :



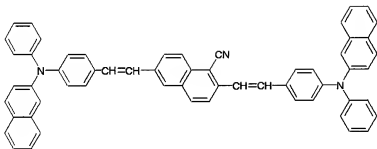
構造式 (29) - 14 :



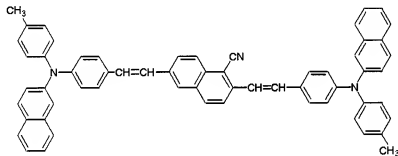
構造式 (29) - 15 :



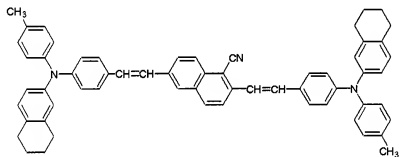
一般式 (29) - 16 :



一般式 (29) - 17 :



一般式 (29) - 18 :

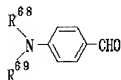


【請求項10】

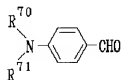
下記一般式〔V〕又は〔VI〕で表される4-（N，N-ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式〔VII〕で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式〔VIII〕で表されるジホスホニウムと；を縮合させることによって、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物を得る、ビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物の製造方法。

【化33】

一般式〔V〕：



一般式〔VI〕：

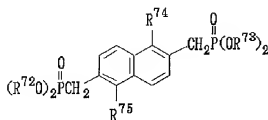


（但し、前記一般式〔V〕及び〔VI〕において、 R^{68} 及び R^{69} はそれぞれ、下記 R^1 、 R^2 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{34} 又は R^{35} に相当するアリール基であり、 R^{70} 及び R^{71} は

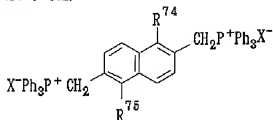
それぞれ、下記R³、R⁴、R¹⁴、R¹⁵、R²⁵、R²⁶、R³⁶又はR³⁷に相当するアリール基である。)

【化34】

一般式 (VII) :



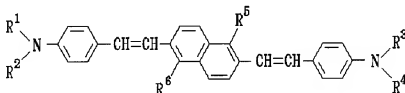
一般式 (VIII) :



(但し、前記一般式 (VII) 及び (VIII) において、R⁷²及びR⁷³はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、R⁷⁴及びR⁷⁵はそれぞれ、下記R⁵、R⁶、R¹⁶、R¹⁷、R²⁷、R²⁸、R³⁸又はR³⁹に相当する基であり、Xはハロゲン原子である。)

【化35】

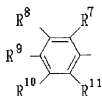
一般式 (I) :



(但し、前記一般式 (I) において、R²及びR³は無置換のアリール基であり、R¹及びR⁴は下記一般式 (1) で表されるアリール基であり

【化36】

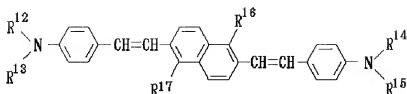
一般式 (1) :



(但し、前記一般式 (1) において、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰及びR¹¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R⁵及びR⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である (但し、R⁵及びR⁶が共に水素原子である場合を

【化 3 7】

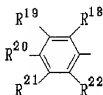
一般式〔Ⅱ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅱ〕において、R¹²、R¹³、R¹⁴及びR¹⁵は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（2）で表されるアリール基であり

【化 3 8】

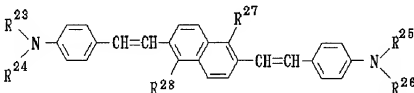
一般式（2）：



（但し、前記一般式（2）において、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰、R²¹及びR²²は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）
 R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である（但し、R¹⁶及びR¹⁷が共に水素原子である場合を除く。）。

【化 3 9】

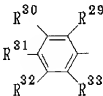
一般式〔Ⅲ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅲ〕において、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は、少なくとも1つが下記一般式（3）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化 4 0】

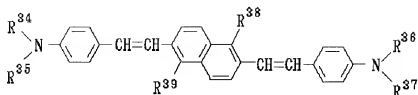
一般式（3）：



（但し、前記一般式（3）において、R²⁹、R³⁰、R³¹、R³²及びR³³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）
 R²⁷及びR²⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である（但し、R²⁷及びR²⁸が共に水素原子である場合を除く。）。

【化 4 1】

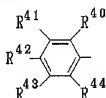
一般式〔IV〕：



〔但し、前記一般式〔IV〕において、 R^{35} 及び R^{36} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（4）で表されるアリール基であり

【化 4 2】

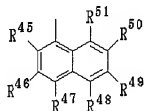
一般式（4）：



（但し、前記一般式（4）において、 R^{40} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 及び R^{44} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基又は炭化水素アミノ基である。）、 R^{34} 及び R^{37} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（5）で表されるアリール基であり

【化 4 3】

一般式（5）：



（但し、前記一般式（5）において、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 及び R^{51} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）
、 R^{38} 及び R^{39} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である（但し、 R^{38} 及び R^{39} が共に水素原子である場合を除く。）。）

【請求項 1 1】

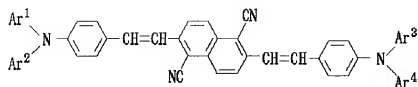
前記縮合をウィッティヒーホーナー（Wittig-Horner）反応又はウィッティヒ（Wittig）反応によって行い、前記ジホスホン酸エステル及び／又は前記ジホスホニウムを溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記 4-（N，N-ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドとを縮合させる、請求項 1 0 に記載した、ビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 1 2】

下記一般式（6）で表されるビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物を得るに際し

【化 4 4】

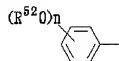
一般式 (6) :



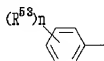
〔但し、前記一般式 (6) において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 4 5】

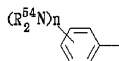
一般式 (7) :



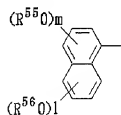
一般式 (8) :



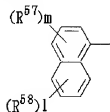
一般式 (9) :



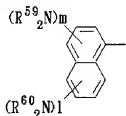
一般式 (10) :



一般式 (11) :



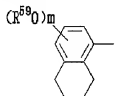
一般式 (12) :



一般式 (12') :



一般式 (12'') :

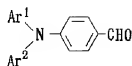


(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、R⁵²、R⁵³及びR⁵⁴は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及びR⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、nは0～6の整数であり、mは0～3の整数であり、lは0～4の整数である。)]、

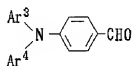
下記一般式 (39) 又は (40) で表される 4- (N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式 (41) で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式 (42) で表されるジホスホンウムと；を縮合させる、請求項10に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物の製造方法。

【化 4 6】

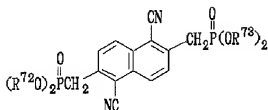
一般式 (39) :



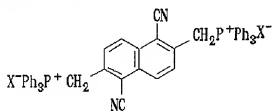
一般式 (40) :



一般式 (41) :



一般式 (42) :



(但し、前記一般式 (39)、(40)、(41) 及び (42) において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷²、R⁷³ 及び X は前記したものと同一である。)

【請求項 13】

前記 R⁷² 及び R⁷³ を炭素数 1～4 の飽和炭化水素基とする、請求項 12 に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 14】

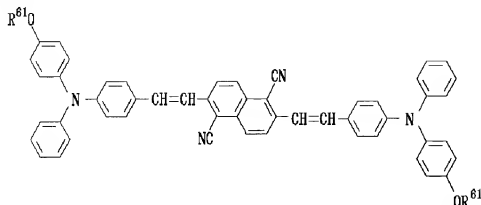
前記 R⁵²、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹ 及び R⁶⁰ の炭素数を 1～6 とする、請求項 12 に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 15】

下記一般式 (13)、(14)、(15)、(16)、(17)、(18)、(18')、(19)、(19)-1、(19)-2 又は (19)-3 で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得る、請求項 10 又は 12 に記載したビス(アミノステリル)

【化 4 7】

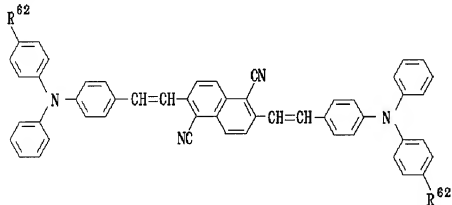
一般式 (13) :



(但し、前記一般式 (1 3) において、 R^{61} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 4 8】

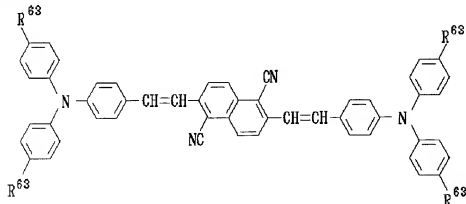
一般式 (14) :



(但し、前記一般式 (1 4) において、 R^{62} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 4 9】

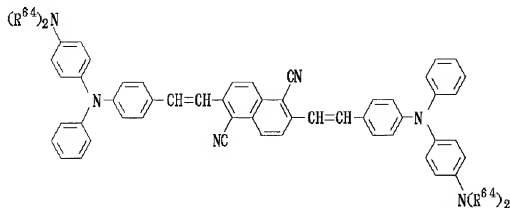
一般式 (15) :



(但し、前記一般式 (1 5) において、 R^{63} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。)

【化 5 0】

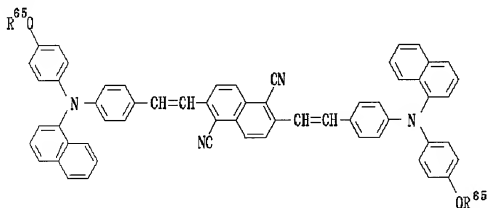
一般式 (16) :



(但し、前記一般式 (16) において、 R^{64} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 5.1】

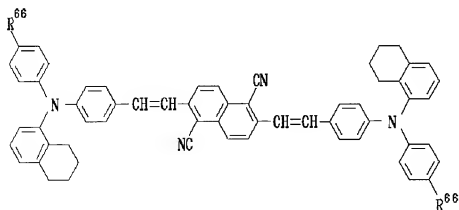
一般式 (17) :



(但し、前記一般式 (17) において、 R^{65} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 5 2】

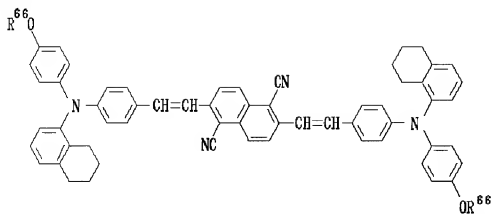
一般式 (18) :



(但し、前記一般式 (18) において、 R^{66} は水素原子又は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 5 3】

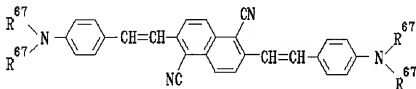
一般式 (18') :



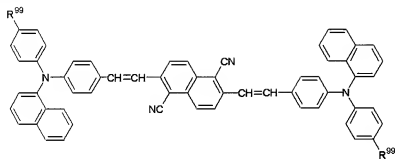
(但し、前記一般式 (18') において、R⁶⁶は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 5 4】

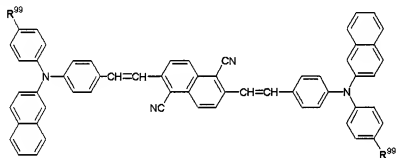
一般式 (19) :



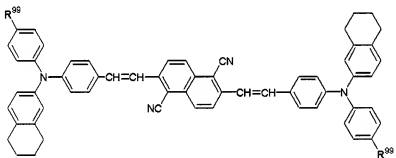
一般式 (19-1) :



一般式 (19-2) :



一般式 (19-3) :



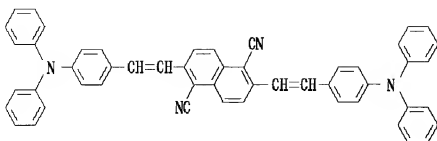
(但し、前記一般式 (19)、(19-1)、(19-2)、(19-3) において、R⁹⁹は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項16】

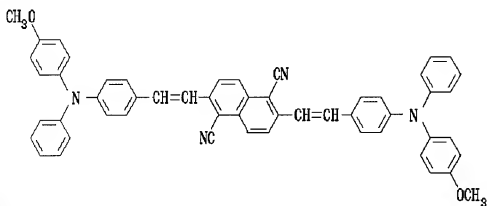
下記構造式 (20)-1、(20)-2、(20)-3、(20)-4、(20)-5、(20)-6、(20)-7、(20)-8、(20)-9、(20)-10、(20)-11、(20)-12、(20)-12'、(20)-13、(20)-14、(20)-15、(20)-16、(20)-17又は(20)-18で表されるビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物を得る、請求項10又は12に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【化 5 5】

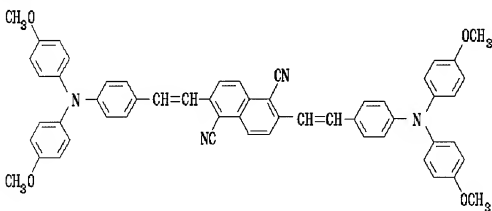
構造式 (20) - 1 :



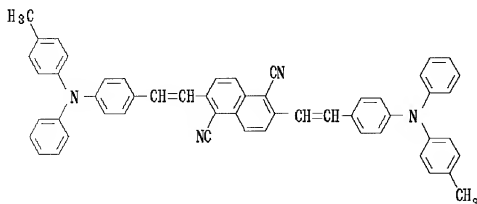
構造式 (20) - 2 :



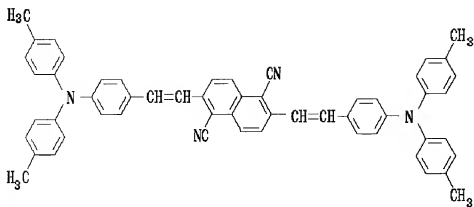
構造式 (20) - 3 :



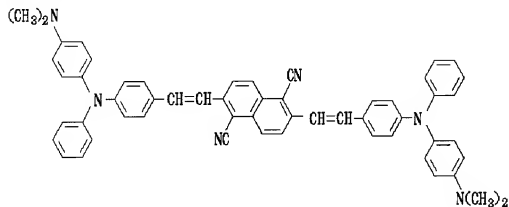
構造式 (20) - 4 :



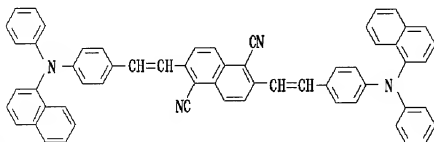
構造式 (20) - 5 :



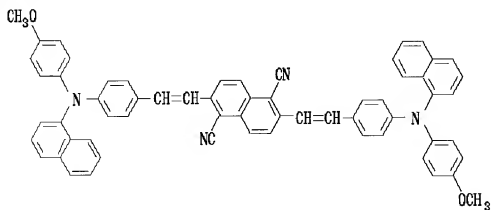
構造式 (20) - 6 :



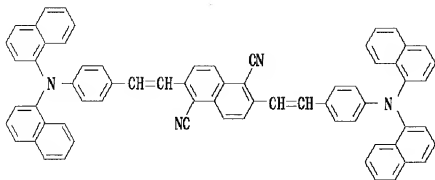
構造式 (20) - 7 :



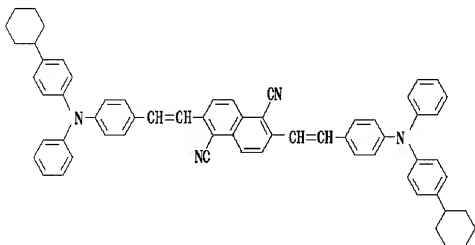
構造式 (20) - 8 :



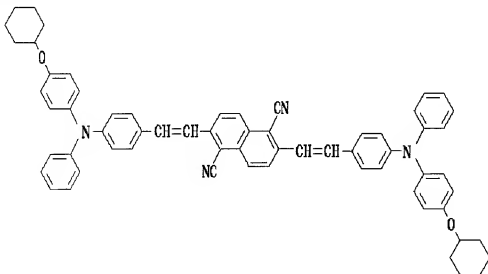
構造式 (20)-9 :



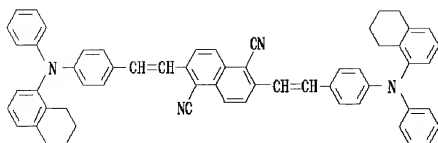
構造式 (20)-10 :



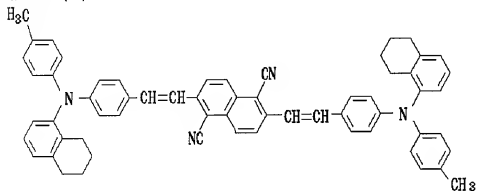
構造式 (20)-11 :



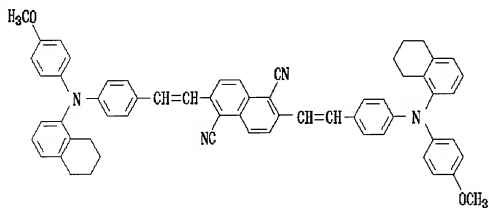
構造式 (20)-12 :



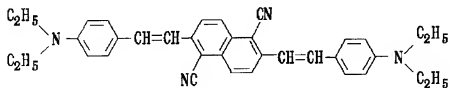
構造式 (20)-12' :



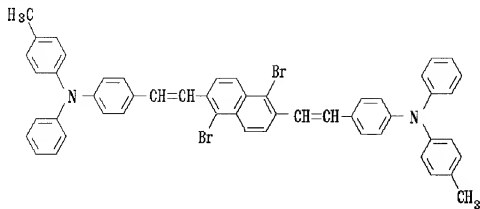
構造式 (20)-13 :



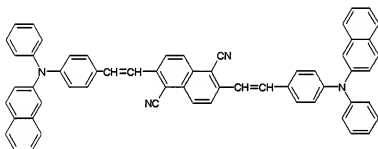
構造式 (20)-14 :



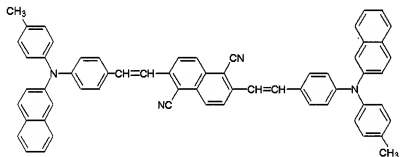
構造式 (20)-15:



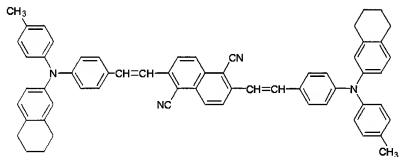
一般式 (20)-16:



一般式 (20)-17:



一般式 (20)-18:

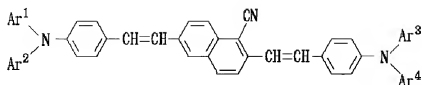


【請求項17】

下記一般式 (21) で表されるビス (アミノステリル) ナフタレン化合物を得るに際し

【化 5 6】

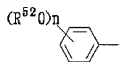
一般式 (21) :



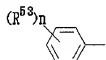
(但し、前記一般式 (21) において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 又は (12'') で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 5 7】

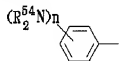
一般式 (7) :



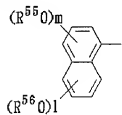
一般式 (8) :



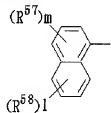
一般式 (9) :



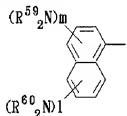
一般式 (10) :



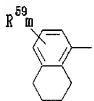
一般式 (11) :



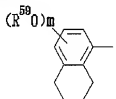
一般式 (12) :



一般式 (12') :



一般式 (12'') :

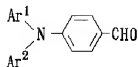


(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、R⁵²、R⁵³及び R⁵⁴は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、n は 0～6 の整数であり、m は 0～3 の整数であり、l は 0～4 の整数である。)]、

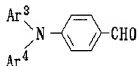
下記一般式 (39) 又は (40) で表される 4- (N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドの少なくとも 1 種と；下記一般式 (43) で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式 (44) で表されるジホスホンウムと；を縮合させる、請求項 10 に記載したビス (アミノスチリル) ナフタレン化合物の製造方法。

【化 5 8】

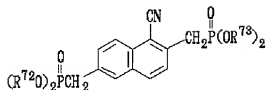
一般式 (39) :



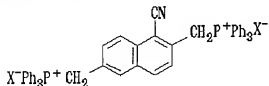
一般式 (40) :



一般式 (43) :



一般式 (44) :



(但し、前記一般式 (39)、(40)、(43) 及び (44) において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと同一である。)

【請求項 1 8】

前記 R⁷²及び R⁷³を炭素数 1～4 の飽和炭化水素基とする、請求項 1 7 に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 1 9】

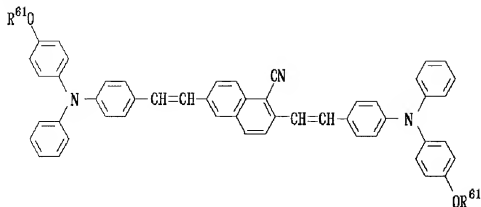
前記 R⁵²、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰の炭素数を 1～6 とする、請求項 1 7 に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【請求項 2 0】

下記一般式 (2 2)、(2 3)、(2 4)、(2 5)、(2 6)、(2 7)、(2 7')、(2 8)、(2 8-1)、(2 8-2) 又は (2 8-3) で表されるビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物、請求項 1 0 又は 1 7 に記載したビス(アミノスチリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【化 5 9】

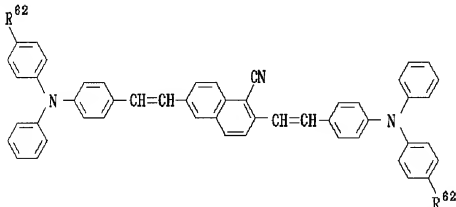
一般式 (22) :



(但し、前記一般式 (2 2) において、R⁶¹は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 6 0】

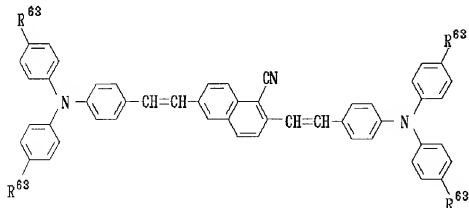
一般式 (23) :



(但し、前記一般式 (2 3) において、R⁶²は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 6 1】

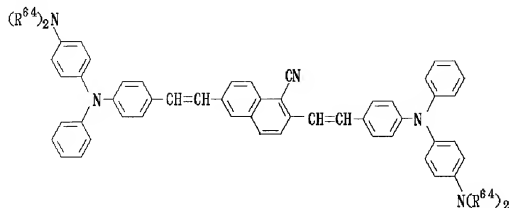
一般式 (24) :



(但し、前記一般式 (2 4) において、R⁶³は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。)

【化62】

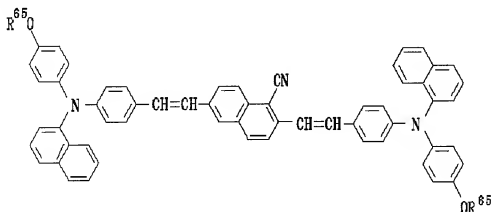
一般式(25):



(但し、前記一般式(25)において、 R^{64} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化63】

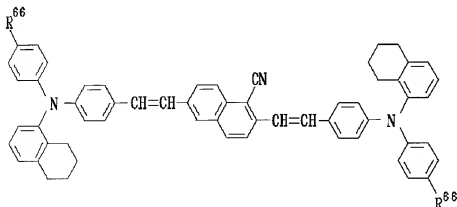
一般式(26):



(但し、前記一般式(26)において、 R^{65} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化64】

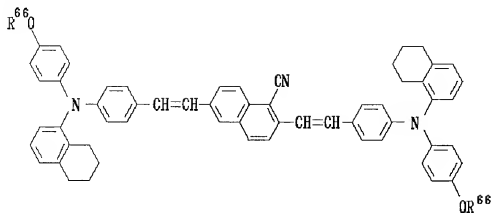
一般式(27):



(但し、前記一般式(27)において、 R^{66} は水素原子又は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 6 5】

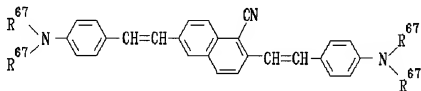
一般式 (27) :



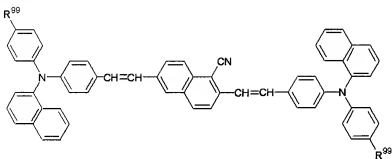
(但し、前記一般式 (27') において、R⁶⁶は水素原子又は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 6 6】

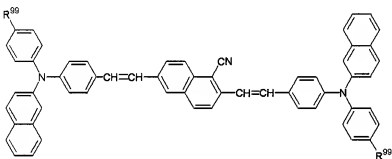
一般式 (28) :



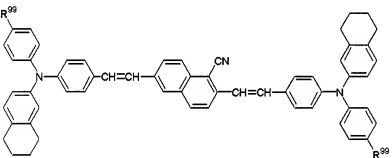
一般式(28-1) :



一般式(28-2) :



一般式(28-3) :



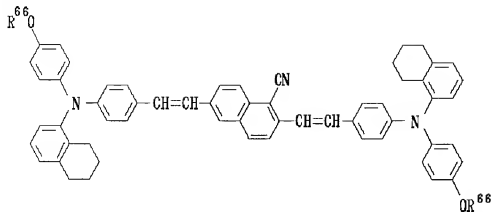
(但し、前記一般式(28)、(28-1)、(28-2)、(28-3)において、R⁹⁷、R⁹⁹は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項21】

下記構造式(29)-1、(29)-2、(29)-3、(29)-4、(29)-5、(29)-6、(29)-7、(29)-8、(29)-9、(29)-10、(29)-11、(29)-12、(29)-12'、(29)-13、(29)-14、(29)-15、(29)-16、(29)-17又は(29)-18で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得る、請求項10又は17に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の製造方法。

【化 6 5】

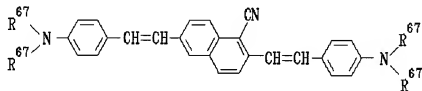
一般式 (27) :



(但し、前記一般式 (27') において、R⁶⁶は水素原子又は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

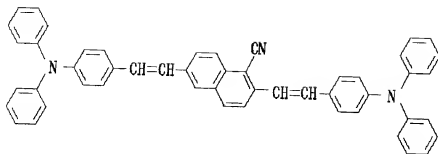
【化 6 6】

一般式 (28) :

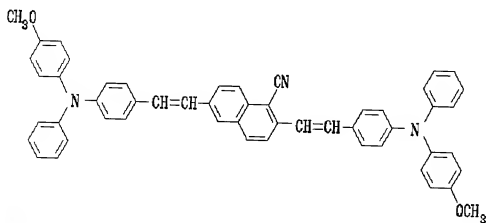


【化 6 7】

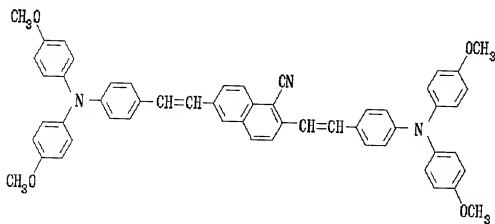
構造式 (29) - 1 :



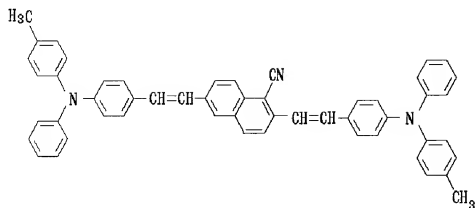
構造式 (29) - 2 :



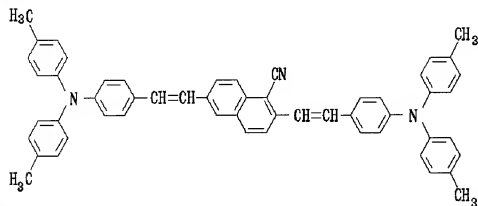
構造式 (29) - 3 :



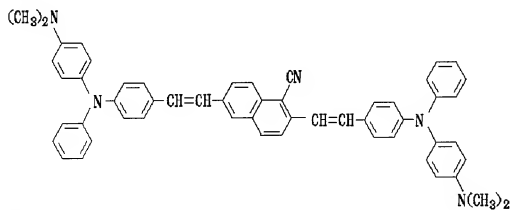
構造式 (29) - 4 :



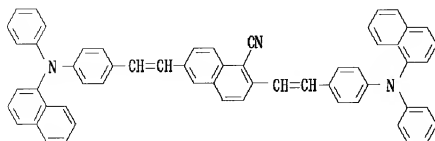
構造式 (29) - 5 :



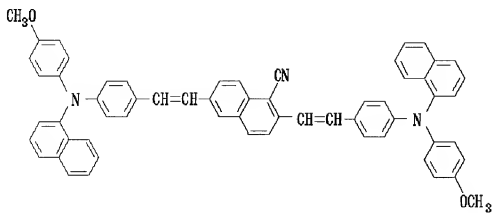
構造式 (29) - 6 :



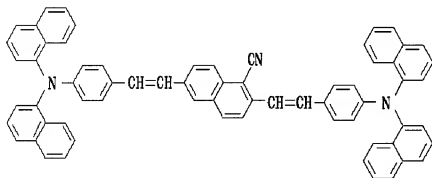
構造式 (29) - 7 :



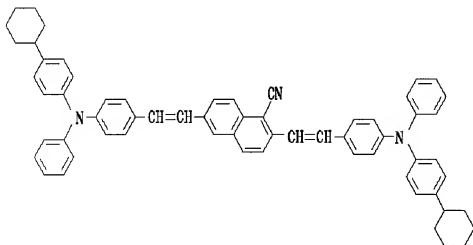
構造式 (29) - 8 :



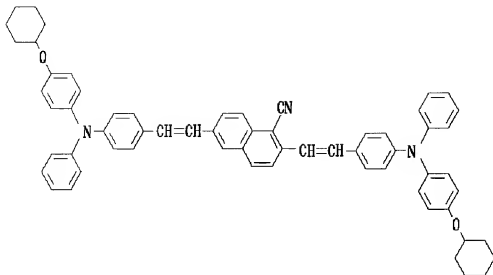
構造式 (29) - 9 :



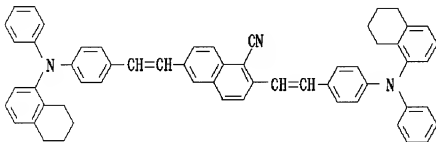
構造式 (29) - 10 :



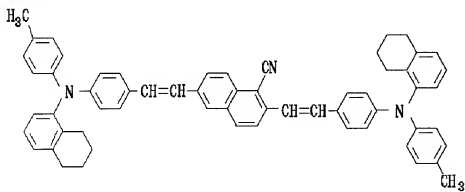
構造式 (29) - 11 :



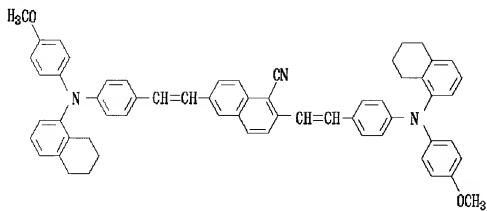
構造式 (29) - 12 :



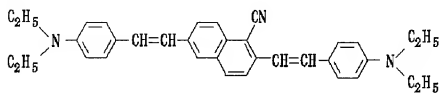
構造式 (29) - 12' :



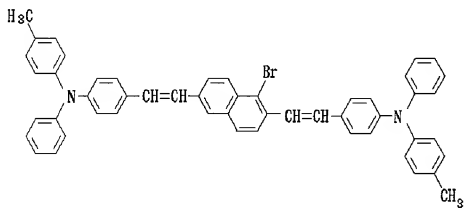
構造式 (29) - 13 :



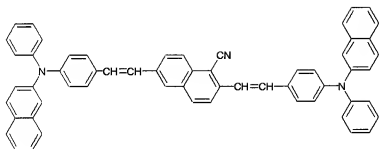
構造式 (29) - 14 :



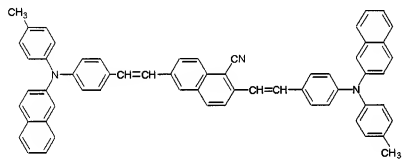
構造式 (29) - 15:



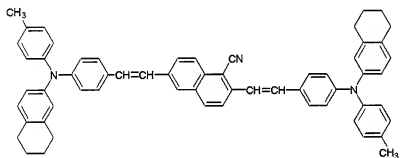
一般式 (29) - 16 :



一般式 (29) - 17 :



一般式 (29) - 18 :



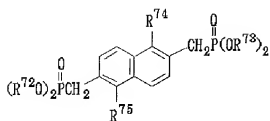
【請求項 22】

下記一般式 (VII) 又は (VIII) で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウム

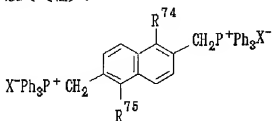
。

【化68】

一般式 (VII) :



一般式 (VIII) :



(但し、前記一般式 (VII) 及び (VIII) において、 R^{72} 及び R^{73} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、 R^{74} 及び R^{75} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり(但し、 R^{74} 及び R^{75} が共に水素原子である場合を除く。)、 X はハロゲン原子である。)

【請求項23】

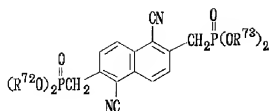
前記 R^{72} 及び R^{73} が炭素数1～4の飽和炭化水素基である、請求項22に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム。

【請求項24】

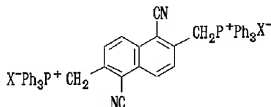
下記一般式(41)又は(42)で表される、請求項22に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム。

【化 6 9】

一般式 (41) :



一般式 (42) :



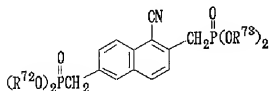
(但し、前記一般式 (4 1) 及び (4 2) において、 R^{72} 、 R^{73} 及び X は前記したものと
同じである。)

【請求項 2 5】

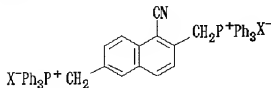
下記一般式 (4 3) 又は (4 4) で表される、請求項 2 2 に記載したジホスホン酸エ
ステル又はジホスホニウム。

【化 7 0】

一般式 (43) :



一般式 (44) :



(但し、前記一般式 (4 3) 及び (4 4) において、 R^{72} 、 R^{73} 及び X は前記したものと
同じである。)

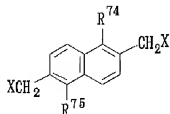
【請求項 2 6】

下記一般式〔IX〕で表されるハロゲン化アリール化合物と、下記一般式〔X〕で表され

ニウムを得る、ジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

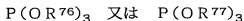
【化 7 1】

一般式〔IX〕：



(但し、前記一般式〔IX〕において、 R^{74} 及び R^{75} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、(但し、 R^{74} 及び R^{75} が共に水素原子である場合を除く。)、 X はハロゲン原子である。)

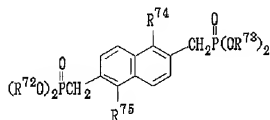
一般式〔X〕：



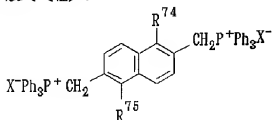
(但し、前記一般式〔X〕において、 R^{76} 及び R^{77} はそれぞれ、同一の又は異なる炭化水素基である。)

【化 7 2】

一般式〔VII〕：



一般式〔VIII〕：



(但し、前記一般式〔VII〕及び〔VIII〕において、 R^{72} 及び R^{73} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、 R^{74} 、 R^{75} 及び X は前記したものと同一である。)

【請求項 2 7】

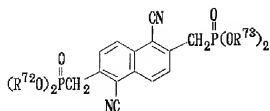
前記 R^{72} 及び R^{73} を炭素数1～4の飽和炭化水素基とする、請求項2 6に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

【請求項 2 8】

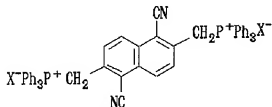
下記一般式(4 1)又は(4 2)で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウムを得る、請求項2 6に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

【化 7 3】

一般式 (41) :



一般式 (42) :



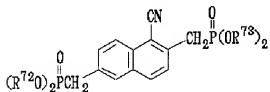
(但し、前記一般式 (4 1) 及び (4 2) において、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと
同じである。)

【請求項 2 9】

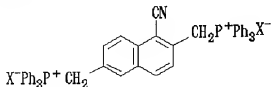
下記一般式 (4 3) 又は (4 4) で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウム
を得る、請求項 2 6 に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウムの製造方法。

【化 7 4】

一般式 (43) :



一般式 (44) :



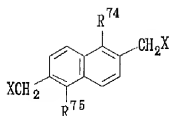
(但し、前記一般式 (4 3) 及び (4 4) において、R⁷²、R⁷³及びXは前記したものと
同じである。)

【請求項 3 0】

下記一般式 [IX] で表されるハロゲン化アリール化合物。

【化 7 5】

一般式〔IX〕：



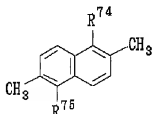
（但し、一般式〔IX〕において、 R^{74} 及び R^{75} はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり（但し、 R^{74} 及び R^{75} が共に水素原子である場合を除く。）、 X はハロゲン原子である。）

【請求項 3 1】

下記一般式〔XI〕で表されるナフタレン化合物と、下記一般式〔XII〕で表される N -ハロゲン化スクシンイミドとを反応させることによって、下記一般式〔IX〕で表されるハロゲン化アリール化合物を得る、ハロゲン化アリール化合物の製造方法。

【化 7 6】

一般式〔XI〕：



（但し、前記一般式〔XI〕において、 R^{74} 及び R^{75} はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子である（但し、 R^{74} 及び R^{75} が共に水素原子である場合を除く。）。）

【化 7 7】

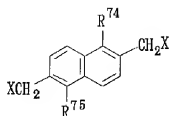
一般式〔XII〕：



（但し、前記一般式〔XII〕において、 X はハロゲン原子である。）

【化 7 8】

一般式【IX】：



(但し、前記一般式【IX】において、R⁷⁴及びR⁷⁵は前記したものと同じであり、Xはハロゲン原子である。)

【請求項 3 2】

発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層に請求項 1 に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の少なくとも 1 種が含まれていることを特徴とする、有機電界発光素子。

【請求項 3 3】

前記有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記正孔輸送層又は電子輸送層又は発光層の形成材料として前記ビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の少なくとも 1 種が用いられている、請求項 3 2 に記載した有機電界発光素子。

【請求項 3 4】

発光領域を有する有機層が陰極と陽極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層に請求項 2 又は 6 に記載したビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の少なくとも 1 種が含まれていることを特徴とする、有機電界発光素子。

【請求項 3 5】

前記有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記正孔輸送層又は電子輸送層又は発光層の形成材料として前記ビス(アミノステリル)ナフタレン化合物の少なくとも 1 種が用いられている、請求項 3 4 に記載した有機電界発光素子。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0001

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、所望の発光色を呈する有機発光材料として好適なビス(アミノステリル)ナフタレン化合物及びその合成中間体、これらの製造方法、並びに有機電界発光素子に関するものである。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0006

【補正方法】変更

【補正の内容】

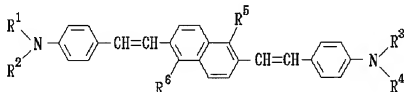
【0006】

本発明の目的は、上記のような現状に鑑み、強い発光を呈する特に黄色～赤色の有機発光材料として好適な化合物及びその合成中間体と、これらを高効率に製造する方法、並びに有機電界発光素子を提供することにある。

【補正対象書類名】明細書
 【補正対象項目名】０００８
 【補正方法】変更
 【補正の内容】
 【０００８】

即ち、本発明はまず、下記一般式〔Ⅰ〕、〔Ⅱ〕、〔Ⅲ〕又は〔Ⅳ〕で表されるビス（アミノスチリル）ナフタレン化合物（以下、本発明の化合物と称する。）に係るものである。

【化１０５】
 一般式〔Ⅰ〕：



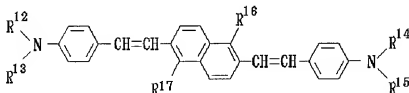
〔但し、前記一般式〔Ⅰ〕において、 R^2 及び R^3 は無置換のアリール基であり、 R^1 及び R^4 は下記一般式（１）で表されるアリール基であり

【化１０６】
 一般式（１）：



〔但し、前記一般式（１）において、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} 及び R^{11} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）、 R^5 及び R^6 は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子（ F 、 Cl 、 Br 、 I 等：以下、同様）である（但し、 R^5 及び R^6 が共に水素原子である場合を除く。）。〕

【化１０７】
 一般式〔Ⅱ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅱ〕において、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 及び R^{15} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（２）で表されるアリール基であり

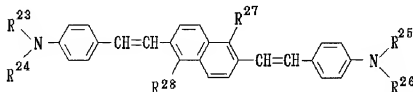
【化１０８】
 一般式（２）：



(但し、前記一般式(2)において、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰、R²¹及びR²²は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である(但し、R¹⁶及びR¹⁷が共に水素原子である場合を除く。)。]

【化109】

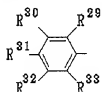
一般式(Ⅲ)：



[但し、前記一般式(Ⅱ)において、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は少なくとも1つが下記一般式(3)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化110】

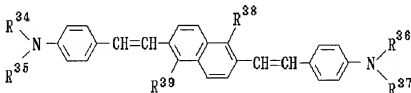
一般式(3)：



(但し、前記一般式(3)において、R²⁹、R³⁰、R³¹、R³²及びR³³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。)、R²⁷及びR²⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である(但し、R²⁷及びR²⁸が共に水素原子である場合を除く。)。]

【化111】

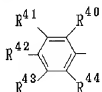
一般式(Ⅳ)：



[但し、前記一般式(Ⅳ)において、R³⁵及びR³⁶は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(4)で表されるアリール基であり

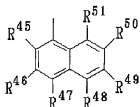
【化112】

一般式(4)：



不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）₃₇及び₃₈は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（5）で表されるアリール基であり【化113】

一般式（5）：



（但し、前記一般式（5）において、₄₅、₄₆、₄₇、₄₈、₄₉、₅₀及び₅₁は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも一つが炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、炭化水素基、又は炭化水素アミノ基である。）₃₈及び₃₉は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である（但し、₃₈及び₃₉が共に水素原子である場合を除く。）。）

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

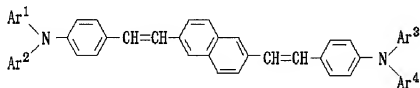
【補正の内容】

【0016】

本発明の化合物の参考例として、下記一般式で表されるものが挙げられる。

【化137】

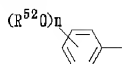
一般式（30）：



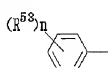
〔但し、前記一般式（30）において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式（7）、（8）、（9）、（10）、（11）、（12）、（12'）又は（12''）で表されるアリール基から選ばれた基である。〕

【化 1 3 8】

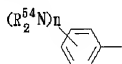
一般式 (7) :



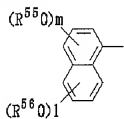
一般式 (8) :



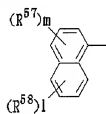
一般式 (9) :



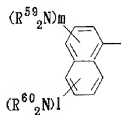
一般式 (10) :



一般式 (11) :



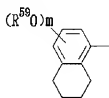
一般式 (12) :



一般式 (12') :



一般式 (12'') :



(但し、前記一般式 (7)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(12') 及び (12'') において、R⁵²、R⁵³及び R⁵⁴炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸、R⁵⁹及び R⁶⁰は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、n は 0～6 の整数であり、m は 0～3 の整数であり、l は 0～4 の整数である。)

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

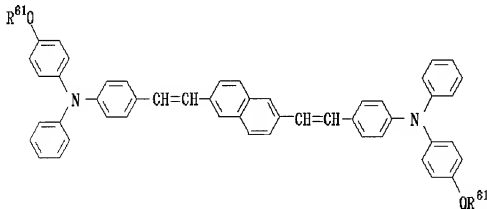
【補正の内容】

【0017】

この参考例の化合物は、より具体的には、下記一般式 (31)、(32)、(33)、(34)、(35)、(36)、(36') 又は (37) で表されるものがある。

【化139】

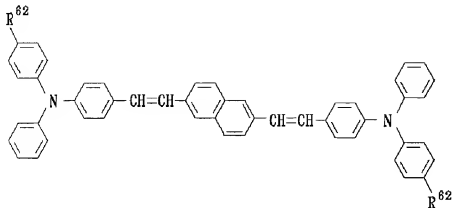
一般式 (31) :



(但し、前記一般式 (31) において、R⁶¹は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化140】

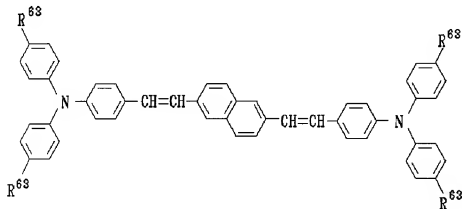
一般式(32)：



(但し、前記一般式(32)において、 R^{62} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化141】

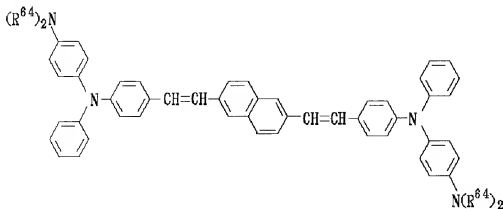
一般式(33)：



(但し、前記一般式(33)において、 R^{63} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基又は炭化水素オキシ基である。)

【化142】

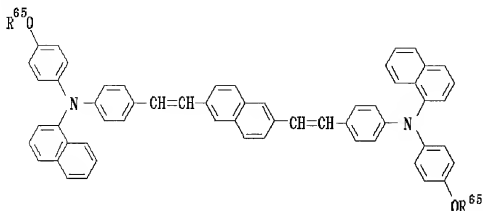
一般式(34)：



(但し、前記一般式(34)において、 R^{64} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素

【化 1 4 3】

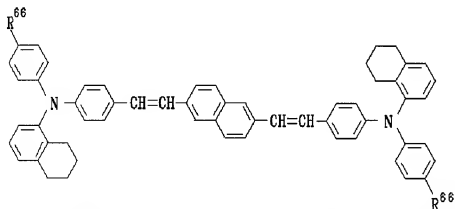
一般式 (35):



(但し、前記一般式 (3 5) において、 R^{65} は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 4 4】

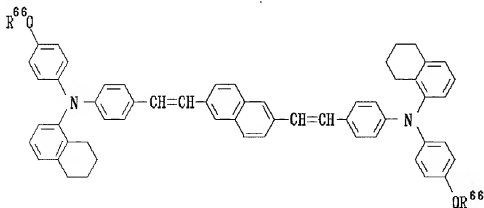
一般式 (36):



(但し、前記一般式 (3 6) において、 R^{66} は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 4 5】

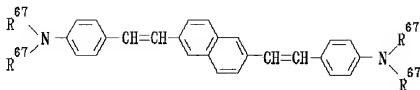
一般式 (36'):



(但し、前記一般式 (3 6') において、 R^{66} は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 4 6】

一般式 (37) :



(但し、前記一般式 (37) において、 R^{67} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0018

【補正方法】変更

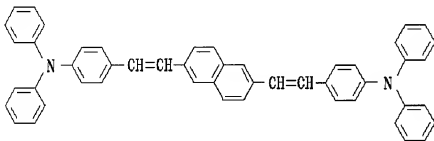
【補正の内容】

【0018】

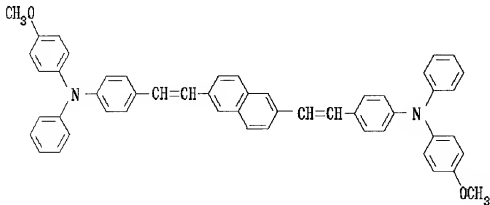
この参考例の化合物は、下記構造式 (38) - 1、(38) - 2、(38) - 3、(38) - 4、(38) - 5、(38) - 6、(38) - 7、(38) - 8、(38) - 9、(38) - 10、(38) - 11、(38) - 12、(38) - 12'、(38) - 13 又は (38) - 14 で表されるものが具体的に例示される。

【化 1 4 7】

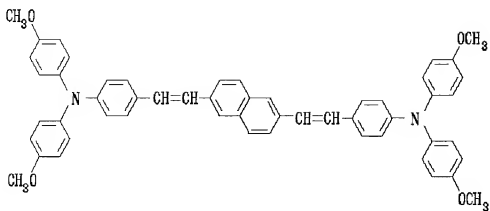
構造式 (38) - 1 :



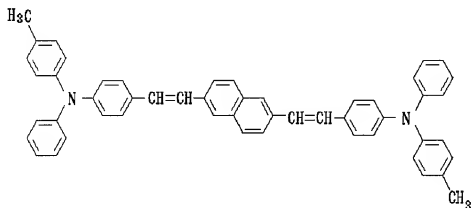
構造式 (38) - 2 :



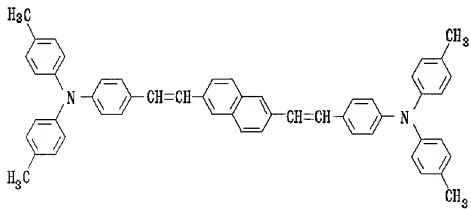
構造式 (38) - 3 :



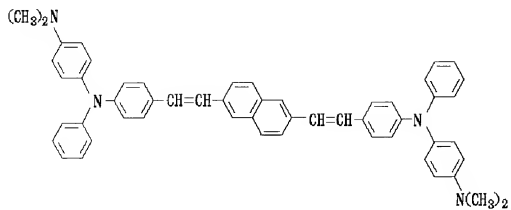
構造式 (38) - 4 :



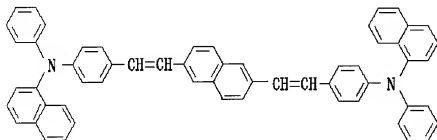
構造式 (38) - 5 :



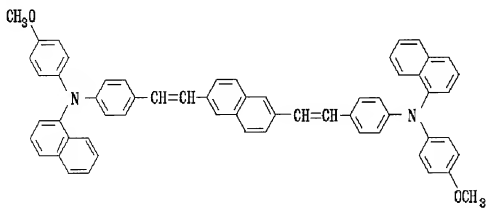
構造式 (38) - 6 :



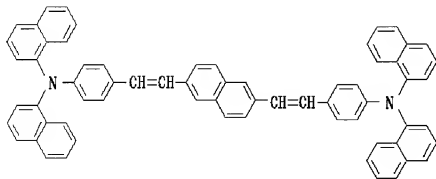
構造式 (38) - 7 :



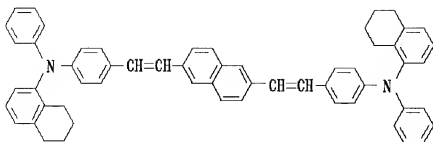
構造式 (38) - 8 :



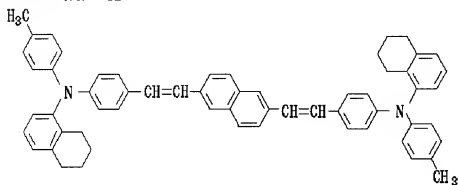
構造式 (38)-9 :



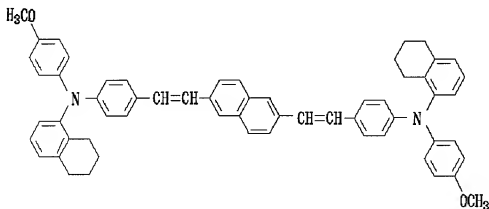
構造式 (38) - 12:



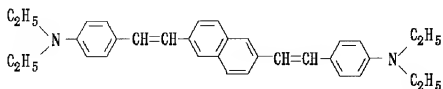
構造式 (38) - 12' :



構造式 (38) - 13 :



構造式 (38) - 14 :



【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

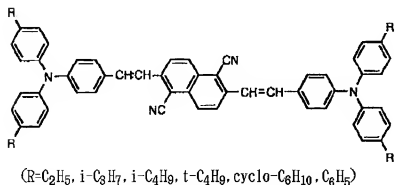
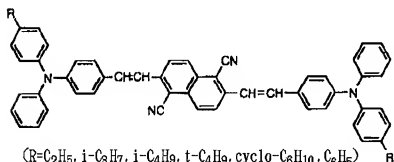
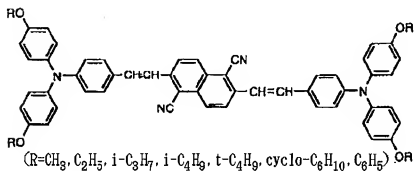
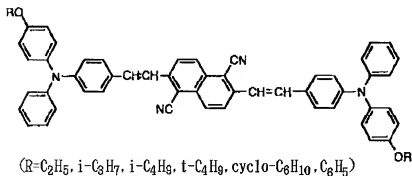
【補正対象項目名】0019

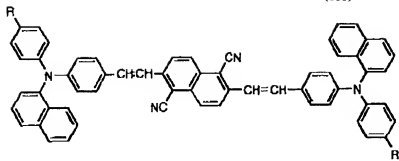
【補正方法】変更

【補正の内容】

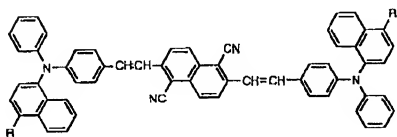
【0019】

上記及び上記以外の本発明の化合物として、次の化合物も例示することができる。

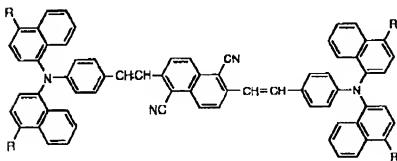




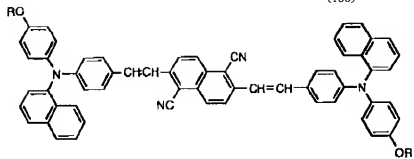
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



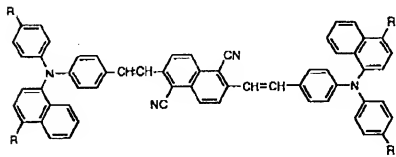
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



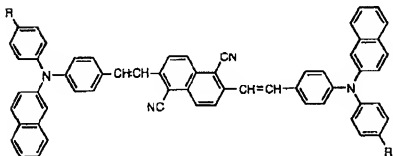
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



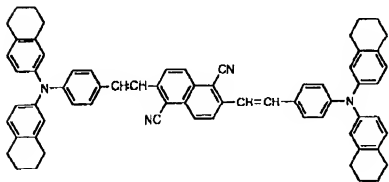
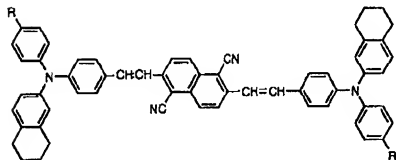
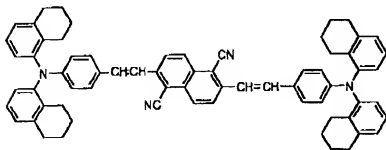
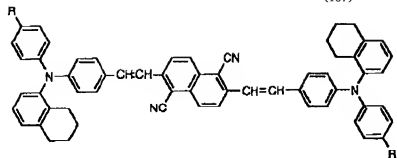
($\text{R}=\text{C}_2\text{H}_5$, $\text{i-C}_3\text{H}_7$, $\text{i-C}_4\text{H}_9$, $\text{t-C}_4\text{H}_9$, $\text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}$, C_6H_5)

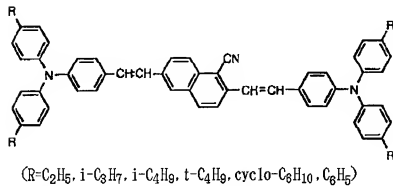
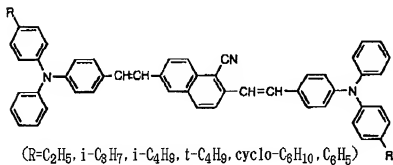
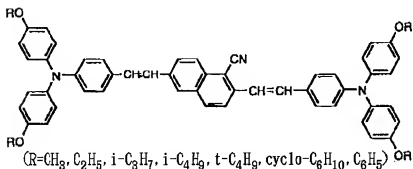
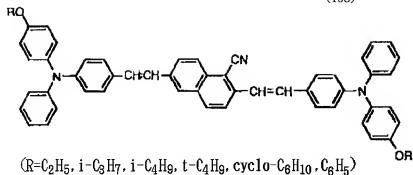


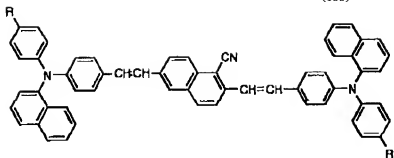
($\text{R}=\text{CH}_3$, C_2H_5 , $\text{i-C}_3\text{H}_7$, $\text{i-C}_4\text{H}_9$, $\text{t-C}_4\text{H}_9$, $\text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}$, C_6H_5)



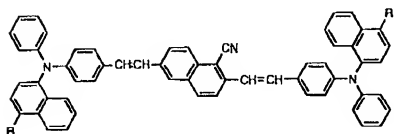
($\text{R}=\text{H}$, CH_3 , C_2H_5 , $\text{i-C}_3\text{H}_7$, $\text{i-C}_4\text{H}_9$, $\text{t-C}_4\text{H}_9$, $\text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}$, C_6H_5)



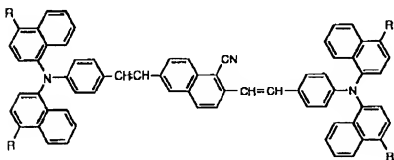




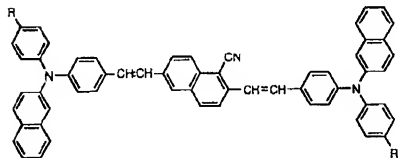
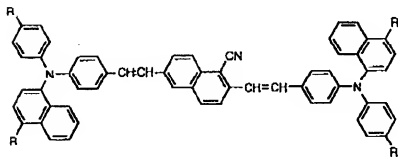
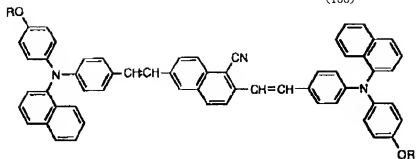
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

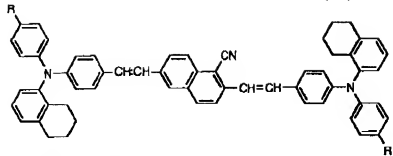


(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

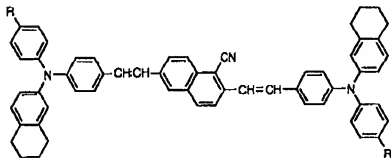
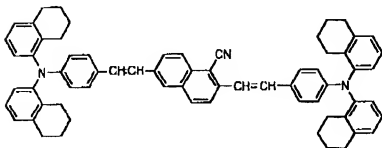


(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

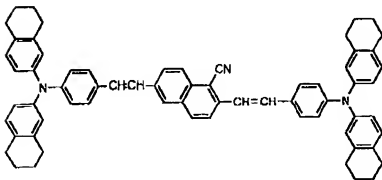




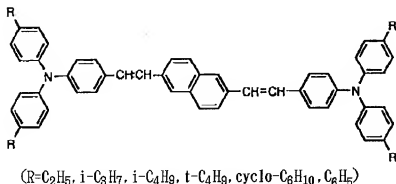
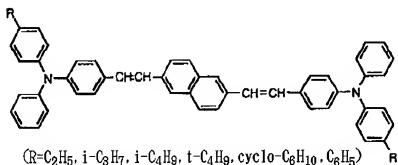
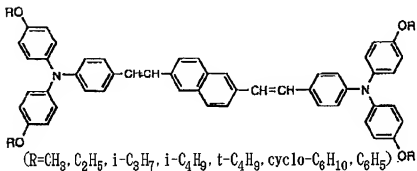
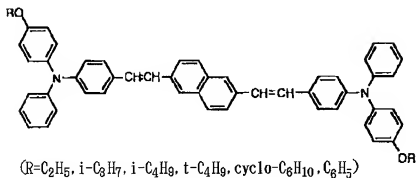
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

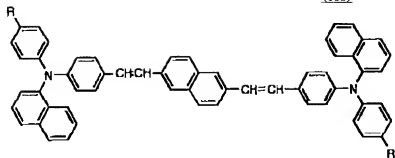


(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)

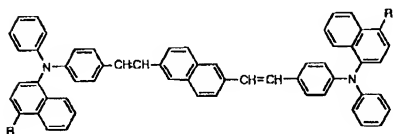


以下は、参考例としての化合物の追加例である。

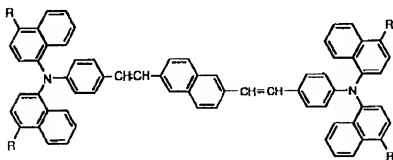




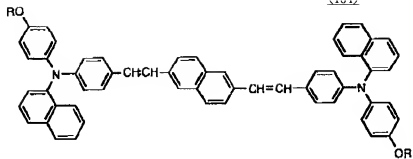
(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



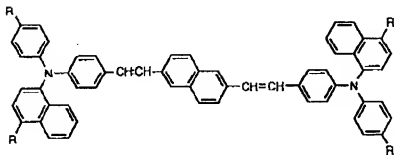
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



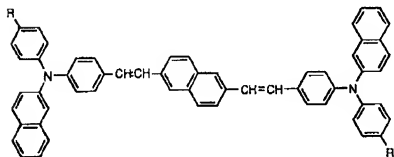
(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



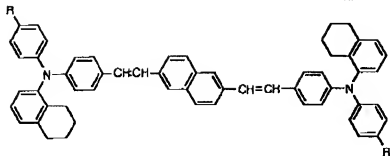
($\text{R}=\text{C}_2\text{H}_5$, $\text{i-C}_3\text{H}_7$, $\text{i-C}_4\text{H}_9$, $\text{t-C}_4\text{H}_9$, $\text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}$, C_6H_5)



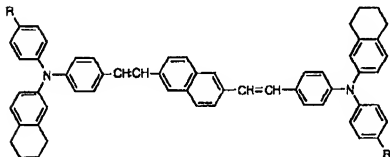
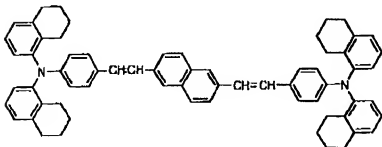
($\text{R}=\text{CH}_3$, C_2H_5 , $\text{i-C}_3\text{H}_7$, $\text{i-C}_4\text{H}_9$, $\text{t-C}_4\text{H}_9$, $\text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}$, C_6H_5)



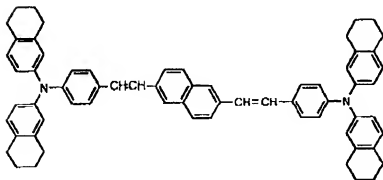
($\text{R}=\text{H}$, CH_3 , C_2H_5 , $\text{i-C}_3\text{H}_7$, $\text{i-C}_4\text{H}_9$, $\text{t-C}_4\text{H}_9$, $\text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}$, C_6H_5)



(R=C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



(R=CH₃, C₂H₅, i-C₃H₇, i-C₄H₉, t-C₄H₉, cyclo-C₆H₁₀, C₆H₅)



【手続補正 10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0027

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0027】

本発明の化合物の製造方法によって、前記一般式(13)、(13')、(14)、(15)、(16)、(17)、(18)、(18')、(19)、(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(26)、(27)、(27')、(28)、(30)で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得ることができ、具体的には、前

記構造式(20)-1、(20)-2、(20)-3、(20)-4、(20)-5、(20)-6、(20)-7、(20)-8、(20)-9、(20)-10、(20)-11、(20)-12、(20)-12'、(20)-13、(20)-14、(20)-15、(29)-1、(29)-2、(29)-3、(29)-4、(29)-5、(29)-6、(29)-7、(29)-8、(29)-9、(29)-10、(29)-11、(29)-12、(29)-12'、(29)-13、(29)-14、(29)-15で表されるビス(アミノステリル)ナフタレン化合物を得ることができる。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

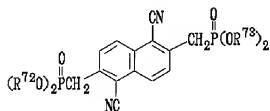
【補正の内容】

【0030】

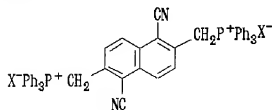
この合成中間体(以下、本発明の合成中間体1と称する。)は、下記一般式(41)、(42)、(43)又は(44)で表される。

【化154】

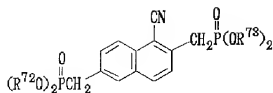
一般式(41)：



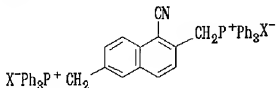
一般式(42)：



一般式 (43) :



一般式 (44) :



(前記一般式 (41)、(42)、(43) 及び (44) において、 R^{72} 、 R^{73} 及び X は前記したものと同じである。)

【手続補正 12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0032

【補正方法】変更

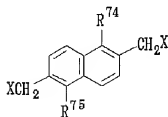
【補正の内容】

【0032】

即ち、下記一般式 (IX) で表される、ハロゲン化アリール化合物と、下記一般式 (X) で表される垂リン酸トリアルキル又はトリフェニルホスフィン (PPh_3) とを反応させることによって、前記一般式 (VII) で表されるジホスホン酸エステル、又は前記一般式 (VIII) で表されるジホスホニウムを合成中間体として得る。この反応は、無溶媒又は $120^{\circ}C$ 以上の沸点を有するキシレン等の溶媒中、又は大過剰の垂リン酸トリアルキル中で反応温度 $120^{\circ}C \sim 160^{\circ}C$ 、常圧で反応時間 $30分 \sim 24時間$ としてよい。

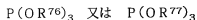
【化 155】

一般式 (IX) :



(但し、前記一般式 (IX) において、 R^{74} 及び R^{75} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり (但し、 R^{74} 及び R^{75} が共に水素原子である場合を除く。)、 X はハロゲン原子である。)

一般式 (X) :



(但し、前記一般式〔X〕において、R⁷⁶及びR⁷⁷はそれぞれ、同一の又は異なる炭化水素基、特に炭素数1～4の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0034

【補正方法】変更

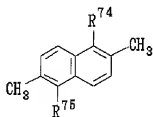
【補正の内容】

【0034】

本発明の合成中間体2は、下記一般式〔XI〕で表されるジメチルナフタレン化合物と、下記一般式〔XII〕で表されるN-ハロゲン化スクシンイミドとを照射下に反応させることによって得ることができる。例えば、四塩化炭素、クロロホルム、ベンゼン、クロロベンゼン等の溶媒中、高圧水銀灯、低圧水銀灯、キセノン灯、ハロゲン灯、日光、蛍光灯等の光源を用いて20～120℃の温度、常圧で30分～48時間の反応時間で反応させる。

【化156】

一般式〔XI〕：



(但し、前記一般式〔XI〕において、R⁷⁴及びR⁷⁵はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、又はハロゲン原子である(但し、R⁷⁴及びR⁷⁵が共に水素原子である場合を除く。))。

【化157】

一般式〔XII〕：



(但し、前記一般式〔XII〕において、Xはハロゲン原子である。)

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-106658

(43)Date of publication of application : 17.04.2001

(51)Int.Cl. C07C211/54

C07C255/58

C07F 9/40

C07F 9/54

C09K 11/06

H05B 33/14

(21)Application number : 11-285255 (71)Applicant : SONY CORP

(22)Date of filing : 06.10.1999 (72)Inventor : ICHIMURA MARI

ISHIBASHI TADASHI

TAMURA SHINICHIRO

(54) BIS(AMINOSTYRYL)NAPHTHALENE COMPOUND AND ITS SYNTHETIC
INTERMEDIATE, AND THEIR PRODUCTION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a bis(aminostyryl)naphthalene compound which emits strong light and can be used as a material emitting yellow to red light, and to provide a general method for producing the compound in high efficiency.

SOLUTION: A bis(aminostyryl)naphthalene compound represented by general formula [I] (R2 and R3 are each a non-substituted aryl; R1 and R4 are each an aryl having a specific substituent such as methoxy; R5 and R6 are each a group such as cyano) or the like. The method for producing the compound comprises, for example, condensing 4-(N,N-diarylamino)benzaldehyde with a

diphosphonate or a diphosphonium.

LEGAL STATUS [Date of request for examination] 21.01.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Drawings are not displayable due to the volume of the data (more than 200 drawings).

* NOTICES *

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula [I], [II], [III], or [IV].

[Formula 1]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 2].

(However, in said general formula (1), R7, R8, R9, and R10 and R11 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R5 And R6 mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a

hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 3]

It is a radical which R12, R13, R14, and R15 are identities mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 4].

(However, in said general formula (2), R18, R19, R20, R21, and R22 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R16 and R17 -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 5]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R23, R24, R25, and R26 are [Formula 6].

(However, in said general formula (3), R29, R30, R31, R32, and R33 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or

partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R27 and R28 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 7]

It is a radical which R35 and R36 are identities mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 8].

(said general formula (4) [however,] -- setting -- R40, R41, R42, R43, and R44 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group.), and R34 and R37 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (5) -- it is -- [Formula 9]

(However, in said general formula (5), R45, R46, R47, R48, R49, R50, and R51 are radicals which are identities mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R38 and R39 -- mutual -- identitas -- or it is a different

radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Claim 2] The bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula (6).

[Formula 10]

[-- however, in said general formula (6), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 11]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) -- [however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 3] The bis(amino styryl) naphthalene compound said whose carbon numbers of R52, R53, R54, R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are 1-6 and which was indicated to claim 2.

[Claim 4] The bis(amino styryl) naphthalene compound which is expressed with

the following general formula (13), (13'), (14), (15), (16), (17), (18), or (18') (19)

and which was indicated to claim 1 or 2.

[Formula 12]

(However, in said general formula (13), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 13]

(However, in said general formula (13'), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 14]

(However, in said general formula (14), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 15]

(However, in said general formula (15), R63 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 16]

(However, in said general formula (16), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 17]

(However, in said general formula (17), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 18]

(However, in said general formula (18), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrogen atom or carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 19]

(However, in said general formula (18'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 20]

(However, in said general formula (19), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 5] The following structure expression (20)-1, (20)-2, (20)-3, (20)-4, (20)-5, (20)-6, (20)-7, (20)-8, (20)-9, (20)-10, (20)-11, (20)-12, and (20)-12', (20) Bis(amino styryl) naphthalene compound which is expressed with -13, (20)-14, or (20)-15 and which was indicated to claim 1 or 2.

[Formula 21]

[Claim 6] The bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula (21).

[Formula 22]

[-- however, in said general formula (21), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general

formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 23]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) --
[however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 7] The bis(amino styryl) naphthalene compound said whose carbon numbers of R52, R53, R54, R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are 1-6 and which was indicated to claim 6.

[Claim 8] The bis(amino styryl) naphthalene compound which is expressed with the following general formula (22), (23), (24), (25), (26), (27), or (27') (28) and which was indicated to claim 1 or 6.

[Formula 24]

(However, in said general formula (22), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 25]

(However, in said general formula (23), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 26]

(However, in said general formula (24), R63 is the hydrocarbon group or hydrocarbon oxy-radical of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 27]

(However, in said general formula (25), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 28]

(However, in said general formula (26), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 29]

(However, in said general formula (27), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrogen atom or carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 30]

(However, in said general formula (27'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 31]

(However, in said general formula (28), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 9] The following structure expression (29) -1, (29)-2, (29)-3, (29)-4, (29)-5,

(29)-6, (29)-7, (29)-8, (29)-9, (29)-10, (29)-11, (29)-12, and (29)-12', (29) Bis(amino styryl) naphthalene compound which is expressed with -13, (29)-14, or (29)-15 and which was indicated to claim 1 or 6.

[Formula 32]

[Claim 10] The bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula (30).

[Formula 33]

[-- however, in said general formula (30), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 34]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) -- [however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 11] The bis(amino styryl) naphthalene compound said whose carbon numbers of R52, R53, R54, R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are 1-6 and

which was indicated to claim 10.

[Claim 12] The bis(amino SUCHICHIRU) naphthalene compound which is expressed with the following general formula (31), (32), (33), (34), (35), (36), or (36') (37) and which was indicated to claim 1 or 10.

[Formula 35]

(However, in said general formula (31), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 36]

(However, in said general formula (32), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 37]

(However, in said general formula (33), R63 is the hydrocarbon group or hydrocarbon oxy-radical of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 38]

(However, in said general formula (34), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 39]

(However, in said general formula (35), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 40]

(However, in said general formula (36), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrogen atom or carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 41]

(However, in said general formula (36'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 42]

(However, in said general formula (37), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 13] The following structure expression (38) -1, (38)-2, (38)-3, (38)-4, (38)-5, (38)-6, (38)-7, (38)-8, (38)-9, (38)-10, (38)-11, (38)-12, and (38)-12', (38) Bis(amino styryl) naphthalene compound which is expressed with -13 or (38)-14 and which was indicated to claim 1 or 10.

[Formula 43]

[Claim 14] By carrying out condensation of the diphosponium and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula [VIII] expressed with at least one sort and the; following general formula [VII] of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula [V] or [VI] The manufacture approach of a bis(amino styryl) naphthalene compound of obtaining the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the

following general formula [I], [II], [III], or [IV].

[Formula 44]

(However, in said general formula [V] and [VI], R68 and R69 are the aryl groups equivalent to following R1, R2, R12, R13, R23, R24 and R34, or R35, respectively, and R70 and R71 are the aryl groups equivalent to following R3, R4, R14, R15, R25, R26 and R36, or R37, respectively.)

[Formula 45]

(However, in said general formula [VII] and [VIII], R72 and R73 are hydrocarbon groups which are identical mutually or are different, respectively, R74 and R75 are the radicals equivalent to following R5, R6, R16, R17, R27, R28 and R38, or R39, respectively, and X is a halogen atom.)

[Formula 46]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 47].

(However, in said general formula (1), R7, R8, R9, and R10 and R11 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R5 And R6 mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a

hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 48]

It is a radical which R12, R13, R14, and R15 are identities mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 49].

(However, in said general formula (2), R18, R19, R20, R21, and R22 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one -- the number of carbonization -- they are the hydrocarbon oxy-radical of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R16 and R17 -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 50]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R23, R24, R25, and R26 are [Formula 51].

(However, in said general formula (3), R29, R30, R31, R32, and R33 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or

partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R27 and R28 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 52]

It is a radical which R35 and R36 are identities mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 53].

(said general formula (4) [however,]) -- setting -- R40, R41, R42, R43, and R44 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group.), and R34 and R37 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (5) -- it is -- [Formula 54]

(However, in said general formula (5), R45, R46, R47, R48, R49, R50, and R51 are radicals which are identities mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R38 and R39 -- mutual -- identitas -- or it is a different

radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Claim 15] The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound to which a carbanion is made to generate by the Wittig-Horner (Wittig-Horner) reaction or the Wittig (Wittig) reaction performing said condensation, and processing said diphosphite and/or said diphosphonium by the base in a solvent, and condensation of this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde is carried out and which was indicated to claim 14.

[Claim 16] It faces obtaining the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula (6), and is [Formula 55].

[-- however, in said general formula (6), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 56]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) --

[however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer

of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4. Carry out condensation of the diphosphonium and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula (42) expressed with at least one sort and the; following general formula (41) of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with], the following general formula (39), or (40). The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound indicated to claim 14.

[Formula 57]

(However, in said general formula (39), (40), (41), and (42), Ar1, Ar2, Ar3, Ar4, and R72, R73 and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 17] The manufacture approach of a bis(amino styryl) naphthalene compound which makes said R72 and R73 the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 16.

[Claim 18] The manufacture approach of a bis(amino styryl) naphthalene compound which sets said carbon number of R52, R53, R54, R55, R56, R57, R58, R59, and R60 to 1-6 and which was indicated to claim 16.

[Claim 19] The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound which obtains the following general formula (13), (14), (15), (16), (17), (18), or (18') the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with (19) and which was indicated to claim 14 or 16.

[Formula 58]

(However, in said general formula (13), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 59]

(However, in said general formula (14), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 60]

(However, in said general formula (15), R63 is the hydrocarbon group or hydrocarbon oxy-radical of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 61]

(However, in said general formula (16), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 62]

(However, in said general formula (17), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 63]

(However, in said general formula (18), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrogen atom or carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 64]

(However, in said general formula (18'), R66 is the hydrocarbon group of the

saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 65]

(However, in said general formula (19), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 20] The following structure expression (20) -1, (20)-2, (20)-3, (20)-4, (20)-5, (20)-6, (20)-7, (20)-8, (20)-9, (20)-10, (20)-11, (20)-12, and (20)-12', (20)

The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound which obtains the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with -13, (20)-14, or (20)-15 and which was indicated to claim 14 or 16.

[Formula 66]

[Claim 21] It faces obtaining the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula (21), and is [Formula 67].

[-- however, in said general formula (21), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 68]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) --

[however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58,

R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identical or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4. Carry out condensation of the diphosphonium and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula (44) expressed with at least one sort and the; following general formula (43) of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with], the following general formula (39), or (40). The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound indicated to claim 14.

[Formula 69]

(However, in said general formula (39), (40), (43), and (44), Ar1, Ar2, Ar3, Ar4, and R72, R73 and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 22] The manufacture approach of a bis(amino styryl) naphthalene compound which makes said R72 and R73 the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 21.

[Claim 23] The manufacture approach of a bis(amino styryl) naphthalene compound which sets said carbon number of R52, R53, R54, R55, R56, R57, R58, R59, and R60 to 1-6 and which was indicated to claim 21.

[Claim 24] The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound indicated to the bis(amino styryl) naphthalene compound and claim 14 which are expressed with the following general formula (22), (23), (24), (25),

(26), (27), or (27') (28), or 21.

[Formula 70]

(However, in said general formula (22), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 71]

(However, in said general formula (23), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 72]

(However, in said general formula (24), R63 is the hydrocarbon group or hydrocarbon oxy-radical of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 73]

(However, in said general formula (25), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 74]

(However, in said general formula (26), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 75]

(However, in said general formula (27), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrogen atom or carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 76]

(However, in said general formula (27'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrogen atom or carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 77]

(However, in said general formula (28), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 25] The following structure expression (29) -1, (29)-2, (29)-3, (29)-4, (29)-5, (29)-6, (29)-7, (29)-8, (29)-9, (29)-10, (29)-11, (29)-12, and (29)-12', (29)-13, (29)-14, or (29)-15 and which was indicated to claim 14 or 21.

[Formula 78]

[Claim 26] It faces obtaining the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula (30), and is [Formula 79].

[-- however, in said general formula (30), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 80]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) --

[however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4. Carry out condensation of the diphosphonium and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula (46) expressed with at least one sort and the; following general formula (45) of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with], the following general formula (39), or (40). The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound indicated to claim 14.

[Formula 81]

(However, in said general formula (39), (40), (45), and (46), Ar1, Ar2, Ar3, Ar4, and R72, R73 and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 27] The manufacture approach of a bis(amino styryl) naphthalene compound which makes said R72 and R73 the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 26.

[Claim 28] The manufacture approach of a bis(amino styryl) naphthalene compound which sets said carbon number of R52, R53, R54, R55, R56, R57, R58, R59, and R60 to 1-6 and which was indicated to claim 26.

[Claim 29] The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene

compound which obtains the following general formula (31), (32), (33), (34), (35), (36), or (36') the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with (37) and which was indicated to claim 14 or 26.

[Formula 82]

(However, in said general formula (31), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 83]

(However, in said general formula (32), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 84]

(However, in said general formula (33), R63 is the hydrocarbon group or hydrocarbon oxy-radical of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 85]

(However, in said general formula (34), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 86]

(However, in said general formula (35), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 87]

(However, in said general formula (36), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrogen atom or carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 88]

(However, in said general formula (36'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 89]

(However, in said general formula (37), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 30] The following structure expression (38) -1, (38)-2, (38)-3, (38)-4, (38)-5, (38)-6, (38)-7, (38)-8, (38)-9, (38)-10, (38)-11, (38)-12, and (38)-12', (38)

The manufacture approach of the bis(amino styryl) naphthalene compound which obtains the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with -13 or (38)-14 and which was indicated to claim 14 or 26.

[Formula 90]

[Claim 31] Diphosphite expressed with the following general formula [VII] or [VIII], or diphosphonium.

[Formula 91]

(however, said general formula [VII] and [VIII] -- setting -- R72 and R73 -- respectively -- mutual -- identitas -- or a different hydrocarbon group -- it is -- R74 and R75 -- respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different radical, those at

least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and X is a halogen atom.)

[Claim 32] Diphosphite or diphosponium said R72 and R73 are the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 31.

[whose]

[Claim 33] Diphosphite or diphosponium which is expressed with the following general formula (41) or (42) and which was indicated to claim 31.

[Formula 92]

(However, in said general formula (41) and (42), R72, R73, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 34] Diphosphite or diphosponium which is expressed with the following general formula (43) or (44) and which was indicated to claim 31.

[Formula 93]

(However, in said general formula (43) and (44), R72, R73, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 35] Diphosphite or diphosponium which is expressed with the following general formula (45) or (46) and which was indicated to claim 31.

[Formula 94]

(However, in said general formula (45) and (46), R72, R73, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 36] The manufacture approach of of the diphosphite or diphosphonium which obtains the diphosphite or diphosphonium expressed with the following general formula [VII] or [VIII] by making the aryl halide compound expressed with the following general formula [IX], and the phosphorous acid trialkyl or triphenyl phosphine (PPh₃) expressed with the following general formula [X] react.

[Formula 95]

(However, in said general formula [IX], R74 and R75 are radicals which are identitas mutually or are different, respectively, those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and X is a halogen atom.)

general formula [X] :P. (OR76) 3 or -- P 3 (OR77) (however, said general formula [X] -- setting -- R76 and R77 -- respectively -- identitas -- or it is a different hydrocarbon group.)

[Formula 96]

(However, in said general formula [VII] and [VIII], R72 and R73 are hydrocarbon groups which are identitas mutually or are different, respectively, and R74, R75, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 37] The manufacture approach of of the diphosphite or diphosphonium which makes said R72 and R73 the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 36.

[Claim 38] The manufacture approach of of the diphosphite or diphosponium which obtains the diphosphite or diphosponium expressed with the following general formula (41) or (42) and which was indicated to claim 36.

[Formula 97]

(However, in said general formula (41) and (42), R72, R73, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 39] The manufacture approach of of the diphosphite or diphosponium which obtains the diphosphite or diphosponium expressed with the following general formula (43) or (44) and which was indicated to claim 36.

[Formula 98]

(However, in said general formula (43) and (44), R72, R73, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 40] The manufacture approach of of the diphosphite or diphosponium which obtains the diphosphite or diphosponium expressed with the following general formula (45) or (46) and which was indicated to claim 36.

[Formula 99]

(However, in said general formula (45) and (46), R72, R73, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 41] The aryl halide compound expressed with the following general formula [IX].

[Formula 100]

(However, in a general formula [IX], R74 and R75 are radicals which are identical or are different, respectively, those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and X is a halogen atom.)

[Claim 42] The naphthalene compound expressed with the following general formula [XI], and the following general formula The manufacture approach of an aryl halide compound of obtaining the aryl halide compound expressed with the following general formula [IX] by making N-halogenation succinimide expressed with [XII] reacting.

[Formula 101]

(However, in said general formula [XI], R74 and R75 are radicals which are identical or are different, respectively, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.)

[Formula 102]

(However, in said general formula [XII], X is a halogen atom.)

[Formula 103]

(However, in said general formula [IX], R74 and R75 are the same as the above mentioned thing, and X is a halogen atom.)

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to these manufacture approaches at a bis(amino styryl) naphthalene compound suitable as an organic luminescent material which presents the desired luminescent color and its synthetic intermediate field, and a list.

[0002]

[Description of the Prior Art] It is spontaneous light, and a speed of response is high-speed, as one candidate of a flat-panel display without an angle-of-visibility dependency, organic electroluminescence devices (EL element) etc. attract attention recently, and the interest about an organic luminescent material is increasing as the component. Implementation of the full color organic light emitting device which is in the place which can control the optical property of an ingredient to some extent by the molecular design, and created all of red, blue, and green three-primary-colors luminescence by each luminescent material by this is possible for the first advantage of an organic luminescent material.

[0003] Since the bis(amino styryl) benzenoid shown by the following general

formula [A] presents strong luminescence of blue - red to a visible-region field depending on the substituent introduced, it is available not only for an organic electroluminescence-devices ingredient but various applications. Furthermore, these ingredients are sublimability and have the advantage which can form the uniform amorphous film according to processes, such as vacuum deposition. Although the optical property of an ingredient can predict until to some extent by molecular orbital count etc. by the end of today, it cannot be overemphasized that the technique of manufacturing the ingredient demanded in fact efficient is the most important on industry.

[0004]

[Formula 104]

(However, in said general formula [A], Ar is the aryl group which may have a substituent, and Ra and Rb show the aryl group which may have the hydrocarbon group of a hydrogen atom, saturation, or partial saturation, and a substituent, a cyano group, a halogen atom, a nitro group, a trifluoromethyl radical, the amino group, or an alkoxy group, respectively, and these may be the same or may differ.)

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Although many compounds which belong to said general formula [A] as an organic luminescent material have so

far been manufactured Luminescence of these ingredients has blue - green many, and what presents luminescence of yellow - red is [only being reported slightly and]. [Institute of Electronics, Information and Communication Engineers,], such as a technical research report, organic electronics, 17 and 7 (1992), Inorganic and Organic Electroluminescence 96 Berlin, and 101 (1996), and the efficient manufacturing method of those were not established, either.

[0006] The purpose of this invention is especially in view of the above present condition to offer [the compound suitable as an organic luminescent material of yellow - red which presents strong luminescence and its synthetic intermediate field, and] the approach of manufacturing these efficient.

[0007]

[Means for Solving the Problem] In order to solve the above-mentioned technical problem, as a result of inquiring wholeheartedly, the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula [I], [II], [III], or [IV] presents strong luminescence, and this invention person used to establish a header and its general and efficient manufacture approach for the ability to become the luminescent material of yellow - red, and used to reach this invention.

[0008] That is, this invention relates to the bis(amino styryl) naphthalene compound (the compound of this invention is called hereafter.) expressed with

the following general formula [I], [II], [III], or [IV] first.

[Formula 105]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 106].

(However, in said general formula (1), R7, R8, R9, and R10 and R11 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R5 And R6 mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom (below : F, Cl, Br, I, etc. are the same).]

[Formula 107]

It is a radical which R12, R13, R14, and R15 are identical mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 108].

(However, in said general formula (2), R18, R19, R20, R21, and R22 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R16 and

R17 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 109]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R23, R24, R25, and R26 are [Formula 110].

(However, in said general formula (3), R29, R30, R31, R32, and R33 are radicals which are identitas mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R27 and R28 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[Formula 111]

It is a radical which R35 and R36 are identitas mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 112].

(said general formula (4 [however,]) -- setting -- R40, R41, R42, R43, and R44 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and hydrogen atoms or those at

least one are the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group.), and R34 and R37 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (5) -- it is -- [Formula 113]

(However, in said general formula (5), R45, R46, R47, R48, R49, R50, and R51 are radicals which are identitas mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon group, or a hydrocarbon amino group. R38 and R39 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.]

[0009] It is the compound which can use the compound of this invention effectively as an organic luminescent material which shows luminescence of yellow - red, and has a high glass transition point and the high melting point, and when excelled in electric, thermal, or chemical stability, it is amorphous, and since a vitreous state can be formed easily, vacuum evaporatio~~n~~o etc. can be performed.

[0010] As for the compound of this invention, what is expressed with the following general formula is desirable.

[Formula 114]

[-- however, in said general formula (6), Ar₁, Ar₂, Ar₃, and Ar₄ may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 115]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) -- [however,] R₅₂, R₅₃, and R₅₄ are the hydrocarbon group (especially a carbon number below : or less with sufficient (it is no permuting when it is a carbon number 0) six) of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. the same -- it is -- R₅₅, R₅₆, R₅₇, R₅₈, R₅₉, and R₆₀ -- mutual -- the hydrocarbon group (especially a carbon number below : or less with sufficient (it is no permuting when it is a carbon number 0) six) of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation the same -- it is -- n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[0011] More specifically, the compound of this invention has the following general formula (13), ((13') 14), (15), (16), (17), (18), or (18') the good thing expressed with (19).

[Formula 116]

(However, in said general formula (13), R₆₁ is the hydrocarbon group of the

saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 117]

(However, in said general formula (13'), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 118]

(However, in said general formula (14), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 119]

(However, in said general formula (15), R63 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 120]

(However, in said general formula (16), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 121]

(However, in said general formula (17), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 122]

(However, in said general formula (18), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 123]

<TXF FR=0003 HE=010 WI=080 LX=0200 LY=1300> (however, in said general formula (18'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 124]

(However, in said general formula (19), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0012] The compound of this invention Following structure-expression (20)-1, (20)-2, (20)-3, (20)-4, (20)-5, (20)-6, (20)-7, (20)-8, (20)-9, (20)-10, (20)-11, (20)-12, and (20)-12', (20) What is expressed with -13, (20)-14, or (20)-15 is illustrated concretely.

[Formula 125]

[0013] As for the compound of this invention, what is expressed with the following general formula is desirable.

[Formula 126]

[-- however, in said general formula (21), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 127]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) --

[however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[0014] More specifically, the compound of this this invention has the following general formula (22), (23), (24), (25), (26), (27), or (27') the good thing expressed with (28).

[Formula 128]

(However, in said general formula (22), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 129]

(However, in said general formula (23), R62 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 130]

(However, in said general formula (24), R63 is the hydrocarbon group or hydrocarbon oxy-radical of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 131]

(However, in said general formula (25), R64 is the hydrocarbon group of the

saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 132]

(However, in said general formula (26), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 133]

(However, in said general formula (27), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 134]

(However, in said general formula (27'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 135]

(However, in said general formula (28), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0015] The compound of this invention Following structure-expression (29)-1, (29)-2, (29)-3, (29)-4, (29)-5, (29)-6, (29)-7, (29)-8, (29)-9, (29)-10, (29)-11, (29)-12, and (29)-12', (29) What is expressed with -13, (29)-14, or (29)-15 is illustrated concretely.

[Formula 136]

[0016] As for the compound of this invention, what is expressed with the following general formula is desirable.

[Formula 137]

[-- however, in said general formula (30), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the following general formula (7), (8), (9), (10), (11), (12), or (12') (12'') the aryl group expressed.

[Formula 138]

And (12') (12'') it sets. said general formula (7), (8), (9), (10), (11), and (12) -- [however,] R52, R53, and R54 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R55, R56, R57, R58, R59, and R60 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-6, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[0017] More specifically, the compound of this invention has the following general formula (31), (32), (33), (34), (35), (36), or (36') the good thing expressed with (37).

[Formula 139]

(However, in said general formula (31), R61 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 140]

(However, in said general formula (32), R62 is the hydrocarbon group of the

saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 141]

(However, in said general formula (33), R63 is the hydrocarbon group or hydrocarbon oxy-radical of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 142]

(However, in said general formula (34), R64 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 143]

(However, in said general formula (35), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 144]

(However, in said general formula (36), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 145]

(However, in said general formula (36'), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 146]

(However, in said general formula (37), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0018] The compound of this this invention Following structure-expression (38)-1, (38)-2, (38)-3, (38)-4, (38)-5, (38)-6, (38)-7, (38)-8, (38)-9, (38)-10, (38)-11, (38)-12, and (38)-12', (38) What is expressed with -13 or (38)-14 is illustrated concretely.

[Formula 147]

[0019] The following compound can also be illustrated as a compound of this inventions other than the above and the above.

[Formula 148]

[0020] This invention as an approach of manufacturing the compound of this invention efficient again By carrying out condensation of the diphosphonium and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula [VIII] expressed with at least one sort and the; following general formula [VII] of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula [V] or [VI] The manufacture approach of this invention of obtaining the bis(amino styryl) naphthalene compound shown by said general formula [I], [II], [III], or [IV] is also offered.

[Formula 149]

(However, in said general formula [V] and [VI], R68 and R69 are the aryl groups equivalent to said R1, R2, R12, R13, R23, R24 and R34, or R35, respectively, and R70 and R71 are the aryl groups equivalent to said R3, R4, R14, R15, R25,

R26 and R36, or R37, respectively.)

[Formula 150]

(However, in said general formula [VII] and [VIII], R72 and R73 are hydrocarbon groups (the saturated-hydrocarbon radical of 1-6: a carbon number especially the following, the same) which are identical mutually or are different, respectively, R74 and R75 are the radicals equivalent to said R5, R6, R16, R17, R27, R28 and R38, or R39, respectively, and X is a halogen atom.)

[0021] Specifically, the manufacture approach of the compound of this invention is the Wittig-Horner (Wittig-Horner) reaction or Wittig (Wittig) about said condensation. A reaction performs, by processing said diphosphite and/or said diphosphonium by the base in a solvent, a carbanion is made to generate and condensation of this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde is carried out.

[0022] For example, it faces obtaining the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with the following general formula (6), and is [Formula 151].

In (said general formula (6 [however,]), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 are the same as the above mentioned thing respectively. Condensation of the diphosphonium and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula (42) expressed with at least one sort and the; following general formula (41) of

4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with), the following general formula (39), or (40) is carried out.

[Formula 152]

(However, in said general formula (39), (40), (41), and (42), Ar1, Ar2, Ar3, Ar4, and R72, R73 and X are the same as the above mentioned thing.)

[0023] If this reaction is expressed with a scheme, it will become, for example like the following reaction scheme 1.

[Formula 153]

[0024] First, by processing a general formula (41) or the compound of (42) with a base in a suitable solvent, this reaction begins from generating a carbanion and is completed by next condensing this carbanion with the aldehyde of a general formula (39). The following can be considered as a combination of a base and a solvent.

[0025] A sodium hydroxide/water, a sodium carbonate/water, potassium carbonate/water, a sodium ethoxide/ethanol, or dimethylformamide, Sodium methoxide / methanol-diethylether mixed solvent, or dimethylformamide, Triethylamine / ethanol, a jig lime, chloroform, or nitromethane, A pyridine / methylene chloride or nitromethane, 1, and 5-diazabicyclo [4.3.0] Non, -5-en / dimethyl sulfoxide, Potassium t-butoxide / dimethyl sulfoxide, a tetrahydrofuran, benzene, or dimethylformamide, A phenyl lithium / diethylether or a

tetrahydrofuran, t-butyl lithium / diethylether, or a tetrahydrofuran, Sodium amide/ammonia, sodium hydride / dimethylformamide or a tetrahydrofuran, trityl sodium / diethylether, or a tetrahydrofuran.

[0026] This reaction advances comparatively at low temperature (-30 degrees C - 30 degrees C), and in addition to purification of the specified substance by the chromatography being easy since it is alternative, since the compound of this invention of a general formula (6) has high crystallinity, it can raise purity with recrystallization. Although not asked especially about the approach of recrystallization, in the approach of dissolving in an acetone and adding a hexane, or toluene, the heating dissolution is carried out and the approach of condensing and cooling is simple. Ordinary pressure may perform this reaction in 3 - 24 hours.

[0027] By the manufacture approach of the compound of this invention, said general formula (13), (13'), (14), (15), (16), (17), (18), (18'), (19), (21), (22), (23), (24), (25), (26), (27), (27'), (28), (30), (31), (32), (33), (34), (35), (36), or (36') the bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with (37) can be obtained. Specifically Said structure expression (20) -1, (20)-2, (20)-3, (20)-4, (20)-5, (20)-6, (20)-7, (20)-8, (20)-9, (20)-10, (20)-11, (20)-12, and (20)-12', (20) -13 and (20) -14, (20)-15, (29)-1, and (29) -2, (29)-3, (29)-4, and (29) -5, (29)-6, (29)-7, and (29) -8, (29)-9, (29)-10 and (29) -11, (29)-12 and (29)-12' (29) -13 and (29)

-14, (29)-15, (38)-1, and (38) -2, (38)-3, (38)-4, and (38) -5, (38)-6, (38)-7, and (38) -8, (38)-9, (38)-10 and (38) -11, (38)-12 and (38)-12' (38) The bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with -13 or (38)-14 can be obtained.

[0028] This invention also offers various compounds suitable as synthetic intermediate field of the compound of this invention again.

[0029] Namely, said general formula [I] [II] It is diphosphonium expressed with the diphosphite which is used as a synthetic intermediate product of a bis(amino styryl) naphthalene compound expressed with [III] or [IV], and is expressed with said general formula [VII], or said general formula [VIII].

[0030] This synthetic intermediate field (the synthetic intermediate field 1 of this invention are called hereafter.) are expressed with the following general formula (41), (42), (43), (44), (45), or (46).

[Formula 154]

(In said general formula (41), (42), (43), (44), (45), and (46), R72, R73, and X are the same as the above mentioned thing.)

[0031] The synthetic intermediate field 1 of this invention can be drawn as follows from the synthetic intermediate field as the precursor.

[0032] That is, the diphosphite expressed with said general formula [VII] or the diphosphonium expressed with said general formula [VIII] is obtained as synthetic intermediate field by making the aryl halide compound expressed with

the following general formula [IX], and the phosphorous acid trialkyl or triphenyl phosphine (PPh₃) expressed with the following general formula [X] react. This reaction is good as 30 minutes - reaction-time 24 hours at the reaction temperature of 120 degrees C - 160 degrees C, and ordinary pressure in solvents, such as a xylene which has a non-solvent or the boiling point 120 degrees C or more, or the phosphorous acid trialkyl of an overlarge.

[Formula 155]

(However, in said general formula [IX], R₇₄₄ ** R₇₅ is a radical which is identical mutually or is different, respectively, those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and X is a halogen atom.)

general formula [X] : P (OR₇₆)₃ or -- P(OR₇₇)₃ (however, in said general formula [X], R₇₆ and R₇₇ are the hydrocarbon groups of the saturation of identical or a different hydrocarbon group, especially carbon numbers 1-4, or partial saturation, respectively.)

[0033] This invention also offers the aryl halide compound (the synthetic intermediate field 2 of this invention are called hereafter) expressed with said general formula [IX] as synthetic intermediate field for obtaining the synthetic intermediate field 1 again.

[0034] The synthetic intermediate product 2 of this invention can be obtained by

making the dimethylnaphtalene compound expressed with the following general formula [XI], and N-halogenation succinimide expressed with the following general formula [XII] react to the bottom of an optical exposure. For example, it is made to react by the reaction time of 30 minutes - 48 hours by the temperature of 20-120 degrees C, and ordinary pressure among solvents, such as a carbon tetrachloride, chloroform, benzene, and a chlorobenzene, using the light source of a high pressure mercury vapor lamp, a low pressure mercury lamp, a xenon LGT, a halogen LGT, daylight, a fluorescent lamp, etc.

[Formula 156]

(However, in said general formula [XI], R74 and R75 are radicals which are identical or are different, respectively, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom.)

[Formula 157]

(However, in said general formula [XII], X is a halogen atom.)

[0035] The following reaction scheme 2 can show the reaction which obtains each synthetic intermediate fields 1 and 2 described above, respectively.

[0036]

[Formula 158]

[0037] Drawing 6 - drawing 9 show the example of the organic electroluminescence devices (EL element) which use the compound of this

invention as an organic luminescent material, respectively.

[0038] Drawing 6 is the transparency mold organic electroluminescence devices A to which luminescence 20 penetrates cathode 3, and luminescence 20 can be observed also from a protective layer 4 side. Drawing 7 shows the reflective mold organic electroluminescence devices B which also obtain the reflected light in cathode 3 as luminescence 20.

[0039] Among drawing, one is a substrate for forming organic electroluminescence devices, and can use glass, plastics, and other proper ingredients. Moreover, a substrate can also be shared when using organic electroluminescence devices combining other display devices. 2 -- a transparent electrode (anode plate) -- it is -- ITO (Indium tin oxide) and SnO_2 etc. -- it can be used.

[0040] Moreover, 5 is an organic luminous layer and contains the compound of this invention as a luminescent material. About this luminous layer, well-known various configurations can be conventionally used as lamination which obtains organic electroluminescence 20. When the ingredient which constitutes an electron hole transportation layer or an electron transport layer has a luminescence so that it may mention later for example, the structure which carried out the laminating of these thin films can be used. Furthermore, in order to raise charge transportability ability in the range which fills the purpose of this

invention, both an electron hole transportation layer, and both [either or] bar using the structure which carried out the laminating of the thin film of two or more sorts of ingredients, or the thin film which consists of a presentation which mixed two or more sorts of ingredients. Moreover, in order to improve the luminescence engine performance, the ingredient of at least one or more sorts of fluorescence may be used, and the structure which pinched this thin film between the electron hole transportation layer and the electron transport layer, and the structure where the ingredient of at least one or more sorts of fluorescence was included in an electron hole transportation layer, electron transport layers, or these both may be used further. In order to improve luminous efficiency in these cases, it is also possible to include the thin film for controlling transportation of an electron hole or an electron in the lamination.

[0041] When the compound of this invention has both electronic transportability ability and electron hole transportability ability, it is possible during a component configuration to use also as a luminous layer which served as the electron hole transportation layer also as a luminous layer which served both as the electron transport layer. Moreover, it is also possible to consider as the configuration put in the electron transport layer and the electron hole transportation layer by making the compound of this invention into a luminous layer.

[0042] In addition, among drawing 6 and drawing 7, three are cathode and can

use the alloy of a metal [activity / calcium / Li, Mg,] and metals, such as Ag, aluminum, and In, or the structure which carried out the laminating of these as an electrode material. In the organic electroluminescence devices of a transparency mold, the light transmittance suitable for an application can be obtained by adjusting the thickness of cathode. Moreover, among drawing, four are the closure and a protective layer and the effectiveness goes up them by making the organic whole electroluminescence devices into wrap structure. A proper ingredient can be used if airtightness is maintained. Moreover, 8 is a drive power source for current impregnation.

[0043] In these organic electroluminescence devices, the organic layer has the organic laminated structure (single hetero structure) to which the laminating of an electron hole transportation layer and the electron transport layer was carried out, and the compound of this invention may be used as a formation ingredient of an electron hole transportation layer or an electron transport layer. Or the organic layer has the organic laminated structure (double hetero structure) to which the laminating of an electron hole transportation layer, a luminous layer, and the electron transport layer was carried out one by one, and the compound of this invention may be used as a formation ingredient of a luminous layer.

[0044] When the example of the organic electroluminescence devices which have such an organic laminated structure is shown, drawing 8 has the laminated

structure to which the laminating of organic layer 5a which consists of an anode plate 2, and the electron hole transportation layer 6 and electron transport layer 7 of translucency on the substrate 1 of translucency, and the cathode 3 was carried out one by one, and is the organic electroluminescence devices C of the single hetero structure where a protective coat 4 comes to carry out the closure of this laminated structure.

[0045] As shown in drawing 8, in the case of the layer structure which omitted the light emitting device, the luminescence 20 of predetermined wavelength is generated from the interface of the electron hole transportation layer 6 and an electron transport layer 7. These luminescence is observed from a substrate 1 side.

[0046] Moreover, drawing 9 has the laminated structure to which the laminating of organic layer 5b which consists of an anode plate 2, and the electron hole transportation layer 10, the luminous layer 11 and electron transport layer 12 of translucency on the substrate 1 of translucency, and the cathode 3 was carried out one by one, and is the organic electroluminescence devices D of the double hetero structure where a protective coat 4 comes to carry out the closure of this laminated structure.

[0047] In the organic electroluminescence devices shown in drawing 9, the electron with which the electron hole poured in from the anode plate 2 was

poured in from cathode 3 through the electron hole transportation layer 10 reaches a luminous layer 11 through an electron transport layer 12, respectively by impressing direct current voltage between an anode plate 2 and cathode 3. Consequently, the recombination of an electron/electron hole arises in a luminous layer 11, a singlet exciton generates, and luminescence of predetermined wavelength is generated from this singlet exciton.

[0048] In each organic electroluminescence devices C and D mentioned above, the ingredient of light transmission nature, such as glass and plastics, can be suitably used for a substrate 1. Moreover, this substrate may be shared, when using combining other display devices, or when arranging the laminated structure shown in drawing 8 and drawing 9 in the shape of a matrix. Moreover, Components C and D can all take any structure of a transparency mold and a reflective mold.

[0049] moreover, the anode plate 2 -- a transparent electrode -- it is -- ITO (indium tin oxide) and SnO₂ etc. -- it can be used. Between this anode plate 2 and the electron hole transportation layer 6 (or electron hole transportation layer 10), the thin film which consists of the organic substance or an organometallic compound may be prepared in order to improve the injection efficiency of a charge. In addition, when the protective layer 4 is formed with conductive ingredients, such as a metal, the insulator layer may be prepared in the side face

of an anode plate 2.

[0050] Moreover, the electron hole transportation layer 6 and an electron transport layer 7 are organic layers by which the laminating was carried out, the compound of this invention described above to these either or both sides contains organic layer 5a in the organic electroluminescence devices C, and it is good as the luminescent electron hole transportation layer 6 or a luminescent electron transport layer 7. Organic layer 5b in the organic electroluminescence devices D can take various laminated structures, although the electron hole transportation layer 10, the luminous layer 11 containing the compound of above-mentioned this invention, and an electron transport layer 12 are organic layers by which the laminating was carried out. For example, both the electron hole transportation layer, and both [either or] may have a luminescence.

[0051] Moreover, although it is desirable for the electron hole transportation layer 6 or an electron transport layer 7, and a luminous layer 11 to consist of a compound of this invention especially, these layers may be formed only with the compound of this invention, or you may form by the compound of this invention, other electron holes, or vapor codeposition with electronic transportation ingredients (for example, aromatic amine and pyrazolines etc.). Furthermore, in an electron hole transportation layer, in order to raise electron hole transportability ability, the electron hole transportation layer which carried out the

laminating of two or more sorts of electron hole transportation ingredients may be formed.

[0052] Moreover, in the organic electroluminescence devices C, although a luminous layer may be the electronic transportability luminous layer 7, depending on the electrical potential difference impressed from a power source 8, light may be emitted by the electron hole transportation layer 6 or its interface. Similarly, in the organic electroluminescence devices D, a luminous layer may be an electron transport layer 12 in addition to layer 11, and may be the electron hole transportation layer 10. In order to raise the luminescence engine performance, it is good that it is the structure where the luminous layer 11 which used at least one sort of fluorescence ingredients was made to pinch between the electron hole transportation layer 10 and an electron transport layer 12. Or the structure where an electron hole transportation layer, electron transport layers, or both these layers were made to contain this fluorescence ingredient may be constituted. In such a case, in order to improve luminous efficiency, it is also possible to include the thin films (a hole blocking layer, exciton generation layer, etc.) for controlling transportation of an electron hole or an electron in the lamination.

[0053] Moreover, you may be the structure in which could use the alloy of a metal [activity / calcium / Li, Mg,] and metals, such as Ag, aluminum, and In, as

an ingredient used for cathode 3, and these metal layers carried out the laminating. In addition, the organic electroluminescence devices corresponding to an application are producible by choosing the thickness and the quality of the material of cathode suitably.

[0054] Moreover, a protective layer 4 can improve charge injection efficiency and luminous efficiency by acting as closure film and making the organic whole electroluminescence devices into wrap structure. In addition, if the airtightness is maintained, a single metal or alloys, such as aluminum, gold, and chromium, etc. can choose the ingredient suitably.

[0055] Although the current impressed to each above-mentioned organic electroluminescence devices is usually a direct current, pulse current and an alternating current may be used. If a current value and an electrical-potential-difference value are within the limits which does not carry out component destruction, there will be especially no limit, but when the power consumption and the life of organic electroluminescence devices are taken into consideration, it is desirable to make light emit efficiently with as small electrical energy as possible.

[0056] Next, drawing 10 is the block diagram of the flat-surface display which used organic electroluminescence devices. In the full color display, like illustration, red (R) and the green organic layer 5 (5a, 5b) which can emit light in

the three primary colors of (G) and blue (B) are allotted between cathode 3 and an anode plate 2. It can prepare in the shape of [which crosses mutually] a stripe, it is chosen by the luminance-signal circuit 14 and the control circuit 15 with a built-in shift register, and a signal level is impressed to each, and cathode 3 and an anode plate 2 are constituted so that the organic layer of the location (pixel) where the cathode 3 and the anode plate 2 which were chosen by this cross may emit light.

[0057] That is, it is a 8x3RGB simple matrix, and drawing 10 arranges the layered product 5 which consists of one side between cathode 3 and an anode plate 2, even if there are few electron hole transportation layers, and luminous layers and electron transport layers either (refer to drawing 8 or drawing 9). Both cathode and an anode plate are made to intersect perpendicularly in the shape of a matrix mutually, impress a signal level serially by the control circuits 15 and 14 with a built-in shift register, and they are constituted so that light may be emitted in the crossover location, while carrying out patterning to the shape of a stripe. Of course, the EL element of this configuration can be used also as picture reproducer as a display of an alphabetic character, a notation, etc. Moreover, the stripe-like pattern of cathode 3 and an anode plate 2 is arranged for every color of red (R), green (G), and blue (B), and it becomes possible to constitute multicolor or all full color solid-state mold flat-panel displays.

[0058]

[Example] Hereafter, although the example of this invention is shown, this invention is not limited to this.

[0059] Example 1 <example of composition of bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -2)> [0060]

[Formula 159]

[0061] Sodium hydride (mineral oil is entered) 10.2mmol was measured in the reaction container, and anhydrous tetrahydrofuran (THF) 10ml was made to suspend under nitrogen-gas-atmosphere mind. It is diphosphite (structure expression (41) -1) (80ml of 1:1 mixed solutions of the anhydrous tetrahydrofuran of 1.72mmol and anhydrous dimethylformamide (DMF) was dropped, 30ml of 4-[N-phenyl-N-(4-methoxyphenyl) amino] benzaldehyde (structure expression (39) -1) 1.27g (4.19mmol) anhydrous tetrahydrofuran solutions was dropped continuously, and it stirred for 10 hours.), stirring at a room temperature. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and dried with anhydrous sodium sulfate.

[0062] 0.273g of red crystals of the bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -2) which is the specified substance was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:8) refining, and recrystallizing [hexane / acetone-].

[0063] 1 The specified substance was identified by HNMR and FAB-MS measurement (20% of yield). ¹ HNMR (CDCl₃) δ (ppm): -- 3.83 (6H, s), 6.87 (4H, d), 6.89-7.14 (12H, m), 7.25-7.53 (14H, m), and 8.03 (2H, d) and 8.31 (2H, d) -- this ¹ HNMR spectrum was as being shown in drawing 1. The glass transition point was 120 degrees C, and the melting point was 272 degrees C.

[0064] 493nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a toluene solution were 545nm.

[0065] Example 2 <the synthetic example which is a bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -3)> [Formula 160]

[0066] Sodium hydride (mineral oil is entered) 7.50mmol is measured in a reaction container. 20ml of 1:1 mixed solutions of THF and dimethylformamide (DMF) is made to suspend. a hexane -- 2 times -- washing -- anhydrous -- On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind phosphonate 100ml of 1:1 mixed solutions of THF and DMF is dropped over 15 minutes. (structure expression (41) -1) anhydrous [0.720g (1.51mmol) and 4-[N and N-Jl (4-methoxypheny) amino] benzaldehyde (structure expression (39) -2) 1.16g (3.61mmol)] -- Then, it stirred on the ice bath for 6 hours, and stirred at the room temperature for further 6 hours. Na₂ SO₄ after quenching reaction mixed liquor on little ice, extracting with toluene and washing with saturation brine It dried in the top. The supernatant was condensed, water was added, produced precipitate was carried

out the ** exception, and it washed repeatedly by ethanol (EtOH).

[0067] The silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, toluene:THF=10:1) refined the obtained solid-state, it recrystallized [toluene], and 0.731g of red crystals of the bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -3) which is the specified substance was obtained.

[0068] 1 The specified substance was identified by HNMR and FAB-MS measurement (58% of yield). ¹ HNMR (CDCl₃) delta (ppm): 3.82 (12H, s), and 6.86 (12H, m), 7.10 (8H, d), 7.43 (8H, m), 8.01 (2H, d) and 8.29 (2H, d) -- this ¹ HNMR spectrum was as being shown in drawing 2. The glass transition point was 140 degrees C, and the melting point was 227 degrees C.

[0069] 502nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a toluene solution were 565nm.

[0070] Example 3 <the synthetic example which is a bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -13)> [Formula 161]

[0071] Sodium hydride (mineral oil is entered) 5.15mmol is measured in a reaction container. 5ml of 3:1 mixed solutions of THF and DMF is made to suspend. a hexane -- 2 times -- washing -- anhydrous -- On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind phosphonate () [structure-expression] (41) -10.410g (0.858mmol) and 4-[N and N- (50ml of 3:1 mixed solutions of THF and DMF is dropped over 15 minutes anhydrous [4-methoxyphenyl-1-(2, 3, 4,

5-tetrahydro naphthyl amino] benzaldehyde (structure expression (39) -3) 0.700g (2.06mmol)] -- after that) It stirred on the ice bath for 6 hours, and stirred at the room temperature for further 12 hours. Na₂ SO₄ after quenching reaction mixed liquor on little ice, extracting with toluene and washing with saturation brine It dried in the top.

[0072] The silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, toluene) refined, it recrystallized [toluene] and 0.465g of red crystals of the bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -13) which is the specified substance was obtained.

[0073] 1 The specified substance was identified by HNMR and FAB-MS measurement (61% of yield). ¹ HNMR (CDC13) Delta (Ppm):1.72 (8H, S), 2.42 (4H, s), 2.83 (4H, s), 3.80 (6H, m), 6.79-6.85 (8H, m), 6.86-7.23 (10H, m), 7.34-7.50 (6H, m), and 8.00 (2H, d) and 8.29 (2H, d) – this ¹ HNMR spectrum was as being shown in drawing 3. The glass transition point was 135 degrees C, and the melting point was 245 degrees C.

[0074] 496nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a toluene solution were 540nm.

[0075] Example 4 <example of composition of diphosphite (structure expression (41) -1)> [0076]

[Formula 162]

[0077] Xylene 40ml was made to suspend 2, 6-JI (bromomethyl) naphthalene -1, and 5-JIKARUBO nitril (structure expression [IX] -1) 0.625g (1.72mmol), and it stirred at 125 degrees C for 4 hours after dropping phosphorous acid triethyl (structure expression [X] -1) 1.80g (10.8mmol). The reaction solution was cooled to the room temperature, and hexane 100ml was added and put, produced precipitate was carried out the ** exception, it washed repeatedly by the hexane, and target diphosphite (structure expression (41) -1) was obtained quantitatively.

[0078] 1 The specified substance was identified by HNMR and FAB-MS measurement.

1 HNMR (CDC13) delta (ppm):1.33 (12H, t), and 3.63 (4H, d), 4.14 (8H, q), 7.84 (2H, d) and 8.42 (2H, d) -- this 1 HNMR spectrum was as being shown in drawing 4.

[0079] an example 5 -- <the synthetic example [0080] of 2, 6-JI (bromomethyl) naphthalene -1, and 5-JIKARUBO nitril (structure expression [IX] -1)>

[Formula 163]

[0081] After dissolving and carrying out the nitrogen purge of the 2, 6-dimethylnaphtalene -1, and 5-JIKARUBO nitril (structure expression [XI] -1) 2.00g (9.70mmol) to chloroform 250ml, 13.6g (structure expression [XII] -1) (76.6mmol) of N-bromosuccinimide was added in 6 steps every 12 hours, flowing back.

[0082] The reaction solution was condensed, alumina chromatography (300 meshes of activated aluminas, chloroform) refined, produced precipitate was carried out the ** exception, and it washed repeatedly by the hexane, it recrystallized [toluene], and 1.32g of yellow crystals of 2, 6-JI (bromomethyl) naphthalene -1, and 5-JIKARUBO nitril (structure expression [IX] -1) which are the specified substance was obtained.

[0083] 1 The specified substance was identified by HNMR and FAB-MS measurement (38% of yield). 1 HNMR (CDC13) delta (ppm):4.83 (4H, s), and 7.86 (2H, d) and 8.47 (4H, d) -- this 1 HNMR spectrum was as being shown in drawing 5.

[0084]

[Function and Effect of the Invention] The compound of this invention can be effectively used as an organic luminescent material which shows strong luminescence of yellow - red depending on the substituent introduced, it is the matter which has a high glass transition point and the high melting point, and it excels in electric, thermal, or chemical stability, and it is amorphous and a vitreous state can be formed easily, and also has sublimability and can also form the uniform amorphous film with vacuum deposition etc. while excelling in thermal resistance. Moreover, the compound of this invention can be manufactured by the general and efficient approach through the synthetic

intermediate field of this invention.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is 1 HNMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -2) of this invention.

[Drawing 2] It is 1 HNMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -3) of this invention.

[Drawing 3] It is 1 HNMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) naphthalene compound (structure expression (20) -13) of this invention.

[Drawing 4] It is 1 HNMR spectrum Fig. of the diphosphite (structure expression (41) -1) as a synthetic intermediate product of this invention.

[Drawing 5] It is 1 HNMR spectrum Fig. of 2 as a synthetic intermediate product of this invention, 6-JI (bromomethyl) naphthalene -1, and 5-JIKARUBO nitril (structure expression [IX] -1).

[Drawing 6] It is the important section outline sectional view of the organic electroluminescence devices based on this invention.

[Drawing 7] It is the important section outline sectional view of organic

electroluminescence devices besides ****.

[Drawing 8] It is the important section outline sectional view of organic electroluminescence devices besides ****.

[Drawing 9] It is the important section outline sectional view of organic electroluminescence devices besides ****.

[Drawing 10] It is the block diagram of the multi or the full color flat-surface display using **** organic electroluminescence devices.

[Description of Notations]

1 [-- A protective coat, 5, 5a, 5b / -- An organic layer, 6 / -- An electron hole transportation layer, 7 / -- An electron transport layer, 8 / -- A power source, 10 / -- An electron hole transportation layer, 11 / -- A luminous layer, 12 / -- An electron transport layer, 14 / -- A luminance-signal circuit, 15 / -- A control circuit, 20 / -- Luminescence light, A B C, D / -- Organic electroluminescence devices] --
A substrate, 2 -- A transparent electrode (anode plate), 3 -- Cathode, 4